
Kohärente Frequenzkonversion ultrakurzer Laserpulse in den vakuum-ultravioletten Spektralbereich

Coherent Frequency Conversion of Ultra Short Laser Pulses towards the VUV Spectral Range
Dissertation von Holger Münch
August 2010



TECHNISCHE
UNIVERSITÄT
DARMSTADT

Fachbereich Physik
Institut für angewandte Physik
Nichtlineare Optik und
Quantenoptik

Kohärente Frequenzkonversion ultra-kurzer Laserpulse in den vakuum-ultravioletten Spektralbereich

Vom Fachbereich Physik
der Technischen Universität Darmstadt

zur Erlangung des Grades
eines Doktors der Naturwissenschaften
(Dr.rer.nat.)

genehmigte
Dissertation

von
Dipl.-Phys. Holger Münch
aus Hannover

Referent: Prof. Dr. Thomas Halfmann
Korreferent: Prof. Dr. Gerhard Birkel

Tag der Einreichung: 14.09.2010
Tag der Prüfung: 15.11.2010

Darmstadt 2010

D17

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Dissertation selbständig und nur mit den angegebenen Hilfsmitteln angefertigt sowie noch keinen Promotionsversuch unternommen zu haben.

Darmstadt, den _____

Unterschrift

Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	i
Einleitung	1
1. Laser- und Nachweissysteme	4
1.1. Erzeugung ultra-kurzer (ps) Laserpulse im sichtbaren Spektralbereich	4
1.2. Verstärkung ultra-kurzer Laserpulse	6
1.3. Zeit- und frequenz aufgelöste Messung ultra-kurzer Laserpulse	8
1.4. Das (ns) Pulslasersystem	13
1.5. Synchronisation der Lasersysteme	16
1.6. Das Vakuumsystem	19
1.7. Aufbau eines Farbstoffverstärkers für (ps) Laserpulse	21
1.7.1. Design der neuen Verstärkerstufen	22
1.7.2. Design des Farbstoffverstärkers	24
1.7.3. Charakterisierung des Farbstoffverstärkers	26
1.7.4. Geplante Weiterentwicklung des Farbstoffverstärkers	28
1.8. Zusammenfassung der Laser- und Nachweissysteme	29
2. Kohärente Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen	30
2.1. Frequenzkonversion in atomaren Gasen	31
2.1.1. Die paraxiale Wellengleichung	31
2.1.2. Die nichtlineare Polarisation in isotropen Medien	32
2.1.3. Resonante Überhöhung der nichtlinearen Polarisation	34
2.2. Prinzip der kohärenten Kontrolle	36
2.3. Experimentelle Realisierung	39
2.3.1. Kopplungschema	39
2.3.2. Experimenteller Aufbau	41
2.4. Ergebnisse und Diskussion	42
2.4.1. Erzeugung der fünften Harmonischen	43
2.4.2. Erzeugung des Vierwellenmischsignals	51
2.4.3. Kohärente Kontrolle der Frequenzkonversion	54
2.5. Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse	61
3. Adiabatisch getriebene Summenfrequenzmischung	63
3.1. Semiklassische Beschreibung von Frequenzkonversionsprozessen	64
3.2. Kohärente Wechselwirkung von Licht und Materie	65
3.2.1. Das kohärent getriebene Zwei-Niveau-System	65
3.2.2. Adiabatische Zustände und adiabatische Entwicklung	68
3.2.3. Dichtematrixformalismus	69
3.2.4. Kohärente Präparation im Zwei-Niveau-System	70
3.3. Vierwellenmischung bei maximaler Kohärenz	73
3.4. Experimentelle Realisierung	76

3.4.1.	Kopplungsschema und Wechselwirkungsparameter	76
3.4.2.	Experimenteller Aufbau	78
3.5.	Ergebnisse und Diskussion	79
3.5.1.	Bedingungen für adiabatisch getriebene Summenfrequenzmischung	80
3.5.2.	Adiabatisch getriebene Summenfrequenzmischung in Xenon	83
3.5.3.	Nachweis adiabatischer Entwicklung bei nah-resonanter Anregung	87
3.5.4.	Zeitliche Entwicklung der kohärenten Präparation	88
3.6.	Erzeugung breitbandiger Spektren im VUV-Spektralbereich	90
3.6.1.	Erzeugung spektral verbreiteter (ps) Probe-Laserpulse	91
3.6.2.	Adiabatische Frequenzkonversion spektral breiter Laserpulse	93
3.7.	Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse	95
	Zusammenfassung und Ausblick	97
	Abstract	101
	Anhang	103
A	Brechungsindexbestimmung von Argon	103
	Literaturverzeichnis	105
	Publikationen und Tagungsbeiträge	111
	Betreute Master- und Bachelorarbeiten	112
	Lebenslauf	113
	Danksagung	115

Einleitung

Die Erzeugung von Laserpulsen mit sehr kurzen Wellenlängen und immer kürzeren Pulsdauern ist Gegenstand der aktuellen Forschung. Solche Strahlung findet vielfältige Anwendungen in der Physik, Chemie, Biologie und den Ingenieurwissenschaften. Typischerweise werden zur Realisierung solcher Laserpulse die Frequenzkomponenten von kurzwelligen, breitbandigen Spektren phasenstarr überlagert. Die Erzeugung entsprechender Spektren im vakuum-ultravioletten Spektralbereich, d.h. mit Wellenlängen zwischen 100 nm und 200 nm, erfolgt typischerweise durch Frequenzkonversionsprozesse. Um eine möglichst hohe Konversionseffizienz dieser Prozesse zu erzielen, sind die Eigenschaften des nichtlinearen optischen Mediums, welches die Frequenzkonversion erst ermöglicht, von entscheidender Bedeutung. Dabei können zum einen die intrinsischen Eigenschaften des Mediums, wie z.B. optisch erlaubte Übergänge zwischen gebundenen Zuständen, zum Vorteil genutzt werden. Andererseits ermöglicht die kohärente Wechselwirkung zwischen Licht und Materie die gezielte Manipulation und Präparation von Besetzungsverteilungen und Polarisationen bzw. Kohärenzen im Medium. Diese Eigenschaften des Mediums wiederum haben eine direkte Rückwirkung auf das Lichtfeld und können so Frequenzkonversionsprozesse gezielt überhöhen oder unterdrücken.

Diese Arbeit beschäftigt sich mit den Anwendungsmöglichkeiten der kohärenten Kontrolle des optisch nichtlinearen Mediums zur Erzeugung von Laserpulsen im tiefen vakuum-ultravioletten Spektralbereich mittels Frequenzkonversion ultrakurzer Pikosekunden (ps) Laserpulse im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich.

Die Arbeit ist in drei Kapitel unterteilt:

Im ersten Kapitel wird ein im Rahmen dieser Arbeit neu aufgebautes zentrales (ps) Lasersystem dargestellt. Das System erlaubt die Erzeugung intensiver, spektral durchstimmbarer Strahlung mit einer bandbreiten-begrenzten Pulsdauer von ca. 1 ps. Die in den nachfolgenden Kapiteln präsentierten Experimente benötigen Laserstrahlung mit Intensitäten im Bereich von $10^{12} - 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Um diese Intensitäten zur Verfügung stellen zu können, wird neben der Erzeugung von schwachen (ps) Laserpulsen im sichtbaren Spektralbereich mittels kommerzieller Lasersysteme insbesondere die Verstärkung dieser Laserpulse diskutiert. Außerdem wurde mit der Entwicklung eines neuen Verstärkersystems begonnen, welches das kommerzielle System in Bezug auf Strahlqualität und Ausgangsleistung übertrifft. Um einen langzeitstabilen Betrieb des (ps) Lasersystems zu gewährleisten, erfordert die Synchronisation der einzelnen Lasersysteme eine besondere Sorgfalt.

Für eine korrekte Interpretation der experimentellen Daten ist es weiterhin notwendig, die charakteristischen Parameter der (ps) Laserpulse zu kennen. Dazu wird ein optischer Aufbau basierend auf dem Prinzip des *frequency-resolved optical gating* entwickelt, der eine simultane zeit- und frequenz aufgelöste Analyse der verstärkten (ps) Laserpulse ermöglicht.

Des Weiteren wird in diesem Kapitel ein spektral durchstimmbares Nanosekunden (ns) Pulslasersystem beschrieben. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine zentrale Komponente des (ns) Lasersystems ausgetauscht, wodurch sich die Eigenschaften der erzeugten, bandbreiten-begrenzten (ns) Laserpulse teils deutlich verändern. Auch die Synchronisation dieses Lasersystems mit dem (ps) Lasersystem für die Realisierung von Experimenten unter zeitgleichem Einsatz von (ps) und (ns) Laserpulsen im dritten Kapitel wird hier diskutiert.

Das zweite Kapitel befasst sich mit der kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen auf Basis von Quanteninterferenzeffekten [1,2]. Dazu werden simultan in einem dichten Atomstrahl zwei resonant überhöhte Frequenzkonversionsprozesse getrieben. In bisherigen Experimenten wurden stets (ns) Laserpulse verwendet [3,4]. Die in dieser Arbeit präsentierten Ergebnisse beruhen auf der Frequenzkonversion von (ps) Laserpulsen. Die beiden realisierten Konversionsprozesse sind zum einen die Erzeugung der fünften Harmonischen von Laserstrahlung der Wellenlänge λ_1 , d.h. ein Fünf-Photonen-Prozess, sowie zum anderen ein Vierwellenmischprozess von einem Photon mit der Wellenlänge λ_1 und zwei Photonen mit der frequenzverdoppelten Wellenlänge $\lambda_2 = \lambda_1/2$, d.h. ein Drei-Photonen-Prozess. Erstmals wird in dieser Arbeit ein Quanteninterferenzexperiment zwischen einem Prozess dritter Ordnung und einem Prozess fünfter Ordnung experimentell umgesetzt, d.h. mit Prozessen relativ hoher Ordnung. Die beiden Prozesse (Erzeugung der fünften Harmonischen und Vierwellenmischung) erzeugen VUV-Strahlung identischer Frequenz, unterscheiden sich jedoch in der Anzahl der konvertierten Photonen. Durch Variation der relativen Phase zwischen den beiden Konversionspfaden bzw. zwischen den involvierten Strahlungsfeldern kann die absolute Intensität der erzeugten VUV-Strahlung gezielt manipuliert werden.

Im dritten Kapitel wird die Konversionseffizienz eines Summenfrequenzmischprozesses durch Präparation einer atomaren Kohärenz im nichtlinearen Medium maximiert [5,6]. Für die Präparation stehen verschieden Techniken zur Verfügung. Diese Techniken lassen sich in diabatische und adiabatische Prozesse unterteilen. Diabatische Prozesse sind sehr sensitiv in Bezug auf experimentelle Parameter der Laserstrahlung, wie zum Beispiel Intensität, Frequenz oder zeitliche Verzögerungen. Weiterhin unterliegen diabatische Prozesse schnellen zeitlichen Oszillationen und erlauben daher nicht die Präparation einer stabilen, zeitlich langsam variierenden atomaren Kohärenz. Adiabatische Prozesse zeichnen sich hingegen durch eine hohe Stabilität bezüglich der experimentellen Parameter aus und ermöglichen ebenfalls die Erzeugung einer stabilen und sich langsam und gleichmäßig entwickelnden atomaren Kohärenz.

Frequenzkonversionsprozesse bei maximaler Kohärenz wurden bereits mehrfach realisiert [6,7,8,9,10,11]. Unterschiedliche adiabatische Techniken wie elektromagnetisch induzierte Transparenz (EIT) [9,12,13] oder *stark-chirped rapid adiabatic passage* (SCRAP) [14,15,16] kamen dabei zum Einsatz. Dabei wird die maximale atomare Kohärenz typischerweise mittels vergleichsweise langer (ns) Laserpulse präpariert. Diese (ns) Laserpulse erlauben eine starke Kopplung zwischen Laserfeld und Atom, sowie für adiabatische Prozesse hinreichend lange

Wechselwirkungszeiten. Diese Notwendigkeit beruht auf der Bedingung für die adiabatische Entwicklung eines Systems $\Omega \cdot \tau \gg 1$ mit der Kopplungsstärke bzw. Rabi-Frequenz Ω und der Wechselwirkungszeit τ . Mit ultra-kurzen (ps) Laserpulsen ist diese Bedingung experimentell wesentlich schwieriger zu erfüllen. Es können zwar vergleichsweise hohe Intensitäten und Kopplungsstärken erzielt werden, jedoch nur während sehr kurzer Wechselwirkungszeiten. Aus diesem Grund wird das Medium mittels eines langen (ns) Pump-Laserpulses und der adiabatischen Technik des *coherent population return* (CPR) [17] in einem Zustand maximaler Kohärenz präpariert. Ein ultra-kurzer (ps) Probe-Laserpuls wechselwirkt mit dem derart präparierten System. Dabei erfolgt die Frequenzkonversion des Probe-Laserpulses in den VUV-Spektralbereich, die als Summenfrequenzmischung von zwei Pump-Laserphotonen und einem Probe-Laserphoton verstanden werden kann. Auf Grund der präparierten Kohärenz im Medium erfolgt diese Frequenzkonversion mit maximaler Konversionseffizienz.

Es wird weiterhin gezeigt, dass das realisierte Mischungsschema auch die Konversion von spektral breitbandiger Laserstrahlung in den tiefen VUV-Spektralbereich ermöglicht, welches eine Grundvoraussetzung zur Erzeugung von Laserpulsen mit Pulsdauern unterhalb einer Femtosekunde ist.

1. Laser- und Nachweissysteme

Im Rahmen dieser Arbeit wurden Experimente zur Erzeugung von vakuum-ultravioletter (VUV) Strahlung mittels Frequenzkonversion durchgeführt. Erstmals in dieser Arbeitsgruppe wurden dazu ultra-kurze Laserpulse mit Pulsdauern von nur etwa einer Pikosekunde (ps) eingesetzt. Dazu wurde ein mehrstufiges Lasersystem aufgebaut, welches die Erzeugung und Verstärkung ultra-kurzer Laserpulse im sichtbaren Spektralbereich ermöglicht. In Abschnitt 1.1, 1.2 und 1.3 wird die Erzeugung, Verstärkung und Analyse dieser (ps) Laserpulse beschrieben. Für die später in Kapitel 3 beschriebene Effizienzsteigerung der Frequenzkonversion in den VUV-Spektralbereich mittels kohärenter Präparation des Mediums wird ein gepulstes Lasersystem benötigt, welches spektral durchstimmbare Laserstrahlung im UV unabhängig von den (ps) Laserpulsen bereitstellt. Dieses Lasersystem wird in Abschnitt 1.4 diskutiert. Abschnitt 1.5 erläutert die Synchronisation der zuvor beschriebenen Lasersysteme miteinander sowie mit dem in Abschnitt 1.6 dargestellten Nachweissystem. In Abschnitt 1.7 wird die Entwicklung eines neuen Farbstoffverstärkers beschrieben, der das kommerzielle System ersetzen soll.

1.1. Erzeugung ultra-kurzer (ps) Laserpulse im sichtbaren Spektralbereich

Ausgangspunkt zur Erzeugung der ultra-kurzen Laserpulse ist ein passiv modenkoppelter Ti:Sa-Oszillator (MIRA900P, Coherent), welcher durch die frequenzverdoppelten Strahlung eines dioden-gepumpten Festkörperlasers bei einer Wellenlänge von 532 nm mit einer Leistung von 13 W gepumpt wird (VERDI V18, Coherent). Der Ti:Sa-Oszillator emittiert einen Pulszug von Laserpulsen mit einer Repetitionsrate von 76 MHz und einer Pulsdauer von ca. 1.2 ps (FWHM der Intensität unter Annahme einer sechsförmigen Einhüllenden [18]) bei Wellenlängen von 760 nm bis 840 nm. Die typische mittlere Ausgangsleistung beträgt 1.5 bis 2.0 Watt. Ein synchron gepumpter optisch parametrischer Oszillator, kurz OPO, (OPOautomatic, APE GmbH) konvertiert die Strahlung wie folgt in den sichtbaren Spektralbereich (siehe Abbildung 1): Innerhalb des Resonators des OPO befindet sich ein periodisch gepolter Lithiumniobat Kristall (PPLN). Durch Differenzfrequenzmischung wird in diesem Kristall die fokussiert einfallende Strahlung des Ti:Sa-Oszillators in Signal- und Idlerstrahlung zerlegt. Durch Einsatz zweier austauschbarer PPLN-Kristalle mit unterschiedlicher Polung kann so zeitgleich Signal-Strahlung entweder mit Wellenlängen in einem Bereich von 1010 nm bis 1160 nm oder von 1140 nm bis 1400 nm erzeugt werden. Je nach verwendetem Kristall und gewünschter Ausgangswellenlänge muss die Wellenlänge der einfallenden Strahlung in dem Bereich 775 ± 10 nm beziehungsweise 830 ± 10 nm gewählt und optimiert werden. Die durch Differenzfrequenzmischung erzeugten spektralen Komponenten werden anschließend mit Hilfe eines dispersiven Elementes zeitlich getrennt. Über eine Variation der Länge der OPO-Kavität kann die Umlaufzeit der gewünschten spektralen Komponente mit dem zeitlichen Abstand der fundamentalen Laserpulse aus dem Ti:Sa-Oszillator synchronisiert werden. Durch diese Technik des synchronen Pumpens erfolgt eine Überhöhung des Differenzfrequenzprozesses nur für die ausgewählte spektrale Komponente, so dass ein nahezu bandbreiten-begrenzter Signal-Puls

erzeugt wird. Der PPLN-Kristall kann mittels Linearverschiebetisch in Strahlrichtung relativ zum Fokus verschoben werden. Dadurch wird die Phasenanpassung zwischen einfallender und generierter Strahlung im Kristall leicht variiert und es ist möglich Signal-Pulse zu erzeugen, welche nicht länger bandbreiten-begrenzt sind, d.h. eine größere spektrale Bandbreite bei unveränderter Pulsdauer aufweisen [19]. Die im PPLN Kristall erzeugten Signal-Pulse werden mittels eines weiteren optisch nichtlinearen Kristalls (LBO) innerhalb der Kavität frequenzverdoppelt. Als Ausgangsstrahlung des OPO (im Folgenden als (ps) Laserpuls bezeichnet) ergibt sich ein Pulszug mit einer Repetitionsrate von 76 MHz und einer Pulsdauer von ca. 1.2 ps im Wellenlängenbereich von 505 nm bis 700 nm. Die Laserpulse sind typischerweise nahezu bandbreiten-begrenzt mit einer Bandbreite von 300 GHz, können aber bei Bedarf durch Verschieben des PPLN Kristalls bis auf ca. 4 THz spektral verbreitert werden. Die mittlere Ausgangsleistung beträgt ca. 300 mW, entsprechend einer Pulsenergie von etwa 4 nJ. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente werden (ps) Laserpulse mit einer Wellenlänge im Bereich von 528.5 nm bis 545.0 nm und variabler Bandbreite verwendet. Die Wellenlängen werden mit einem kommerziellen Spektrometer (WaveScan, APE GmbH) mit einer Genauigkeit von 0.1 nm bestimmt.

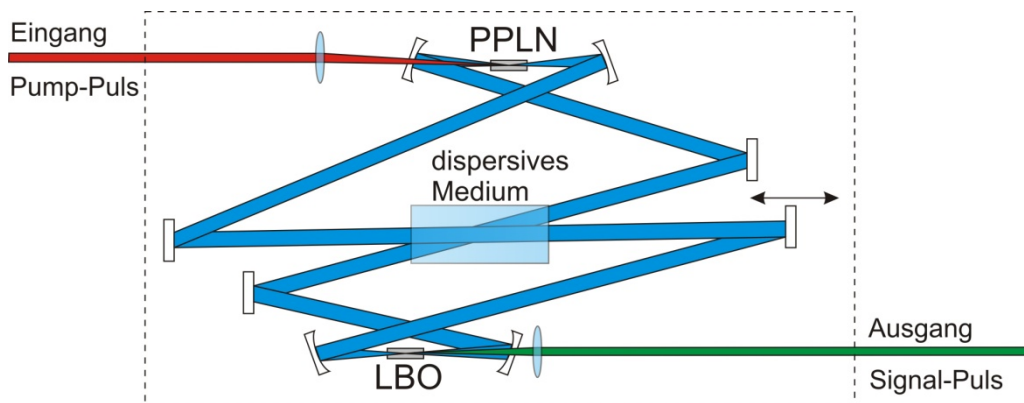


Abbildung 1: Schematische Darstellung des synchron gepumpten optisch parametrischen Oszillators (OPO) zur Erzeugung von (ps) Laserpulsen im sichtbaren Spektralbereich.

Das beschriebene Lasersystem erweist sich als äußerst anfällig gegenüber Schwankungen der Umgebungstemperatur. Bereits bei einer Temperaturänderung von lediglich 0.5 °C bricht die passive Modenkopplung des Ti:Sa-Oszillators zusammen und es wird nur noch kontinuierliche Laserstrahlung emittiert. Weiterhin kommt es zu langsamen zeitlichen Variationen der Wellenlänge, da sich die wellenlängenselektiven Elemente innerhalb der Kavität thermisch verziehen. Dies führt zu Instabilitäten des OPO bezüglich der Ausgangswellenlänge und der spektralen Bandbreite sowie der emittierten Leistung. Im Laufe eines Tages kann sich bei normalem Betrieb des Labors die Umgebungstemperatur um bis zu 6 °C erhöhen. Aus diesem Grund wurde eine Zelle konstruiert, in der sich der Ti:Sa-Oszillator samt Pumplaser sowie der OPO befinden (siehe Abbildung 2). Die Zelle ist thermisch von der Umgebung entkoppelt und wird mittels eines Luft-Wasser-Wärmetauschers aktiv auf ± 0.1 °C stabilisiert. Dadurch wird ein stabiler Langzeitbetrieb des beschriebenen Lasersystems ermöglicht.

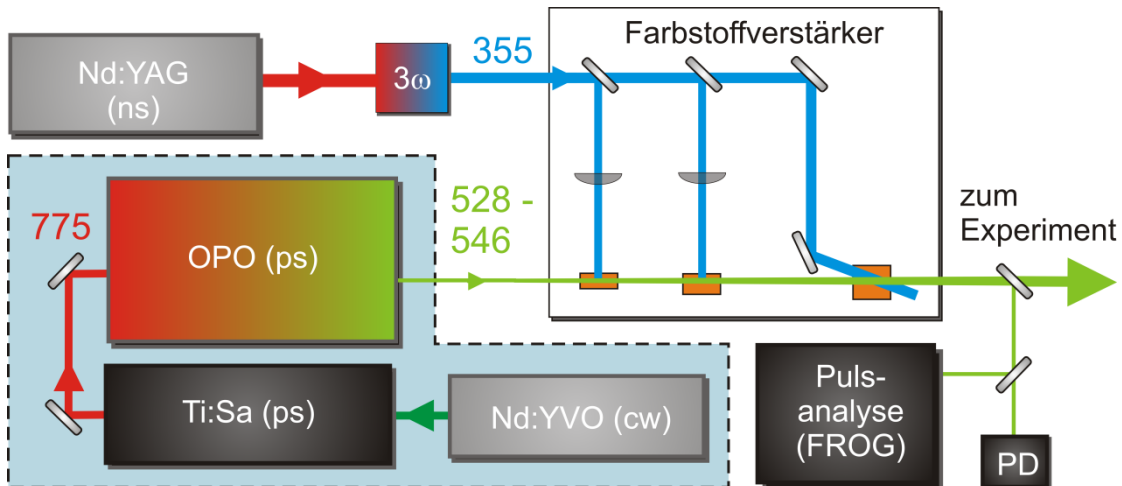


Abbildung 2: Schematische Darstellung des Lasersystems zur Erzeugung, Verstärkung und Analyse von (ps) Laserpulsen im sichtbaren Spektralbereich. Die angegebenen Zahlen entsprechen Wellenlängen in Nanometern. Der blau hinterlegte Bereich repräsentiert den mittels Klimazelle auf $\pm 0.1^\circ\text{C}$ thermisch stabilisierten Teil des Lasersystems.

1.2. Verstärkung ultra-kurzer Laserpulse

Für die Realisierung von Frequenzkonversionsprozessen, wie sie in dieser Arbeit durchgeführt wurden, sind Laser-Intensitäten von $10^{13} - 10^{14} \text{ W/cm}^2$ notwendig. Bei typischen Strahldurchmessern von mehreren $10 \mu\text{m}$ entspricht dies Leistungen von ca. $10^7 - 10^8 \text{ W}$ beziehungsweise Pulsenergien von $10 - 100 \mu\text{J}$ bei einer Pulsdauer von etwa 1 ps . Daher ist es notwendig die erzeugten (ps) Laserpulse mittels eines gepulsten Farbstoffverstärkers nachzuverstärken. Farbstoffverstärker bieten gegenüber festkörperbasierten Verstärkern, wie z.B. regenerativen Verstärkern oder optisch parametrischen Verstärkern (*optical parametric amplifier*, OPA), folgende Vorteile:

- (i) Ein einzelner Farbstoffverstärker kann durch die Verwendung verschiedener Farbstoffe nahezu über den gesamten sichtbaren Spektralbereich eingesetzt werden. Regenerative Verstärker sind auf Grund fehlender Verstärkungsmedien typischerweise nur für Ti:Sa- oder Nd:YAG-Wellenlängen zu realisieren.
- (ii) Im Gegensatz zu einem OPA kann die Pumpenergie im Verstärkungsmedium gespeichert werden. Dies ermöglicht den effizienten Einsatz eines im Labor vorhandenen Hochenergie Nd:YAG Lasers mit Pulsdauern von einigen Nanosekunden als Pumpquelle.

Die Verstärkung der vom OPO erzeugten (ps) Laserpulse erfolgte in einem modifizierten, kommerziellen gepulsten Farbstoffverstärker (PDA2, Spectra Physics). Als Pump-Strahlung für den PDA2 dient die frequenzverdreifachte Strahlung eines gepulsten, durch injection seeding longitudinal einmodigen Nd:YAG Festkörperlasers (QuantaRay GCR4, Spectra Physics). Als Seed-Laser dient ein temperaturstabilisierter Faserlaser (Scorpion Laser Module, NP Photonics). Die Pulsenergie der frequenzverdreifachten Strahlung mit einer Wellenlänge von 355 nm beträgt typischerweise 180 mJ bei einer Pulsdauer von ca. 8 ns (FWHM der Intensität). Die emittierten Pulse sind nahezu bandbreiten-begrenzt bei einer Repe-

titionsrate von 20 Hz. Die Synchronisation von (ns) Pump-Laserpuls und (ps) Laserpuls erfolgt durch Einsatz hochstabiler und schneller Elektronik zur externen Ansteuerung des Pump-Lasers. Eine detaillierte Beschreibung der Synchronisationselektronik sowie der Abfolge der Triggerpulse erfolgt im Abschnitt 1.5.

Für die Verstärkung von (ps) Laserpulsen mit Wellenlängen unterhalb von 546 nm wird als aktives Medium im Verstärker ein Laserfarbstoff benötigt, dessen Absorptionsbande im ultravioletten Spektralbereich, genauer bei der dritten Harmonischen der Nd:YAG-Laserwellenlänge bei 355 nm, liegt. Die Strahlführungsoptiken des mehrstufigen PDA2 sind für Pump-Strahlung dieser Wellenlänge nicht ausgelegt und wurden gegen geeignete Optiken ausgetauscht. Zugleich wurden die bis dahin verwendeten Strahlteiler mit festem Teilungsverhältnis teilweise gegen variable Strahlteiler ersetzt. Dies ermöglicht eine Optimierung der den einzelnen Verstärkerstufen zur Verfügung gestellten Pumpenergie. Die verstärkten (ps) Laserpulse haben eine Pulsenergie von bis zu 150 μJ bei einer Repetitionsrate von 20 Hz. Auf Grund der Wiederholrate der von Pump-Laser und OPO erzeugten (ns) bzw. (ps) Laserpulse wird nur in etwa jeder 3.8 millionste (ps) Laserpuls verstärkt. Die übrigen (ps) Laserpulse passieren den Verstärker unverstärkt. Von der Farbstofflösung werden jedoch ca. 90% der Pulsenergie der unverstärkten (ps) Laserpulse absorbiert. Die verbleibenden 10% bleiben als Untergrund erhalten. Bei einem Verstärkungsfaktor von $\sim 5 \cdot 10^4$ stellt dies für die Experimente kein Problem dar, da die Intensität der unverstärkten Laserpulse zu gering ist, um einen störenden Einfluss zu haben.

Abbildung 3 zeigt die Fluktuationen der Pulsenergie der verstärkten (ps) Laserpulse mit einer Wellenlänge von 540 nm. Die Messzeit beträgt ungefähr 90 Sekunden, d.h. es wird die Pulsenergie für etwa 1800 einzelne Laserpulse aufge-

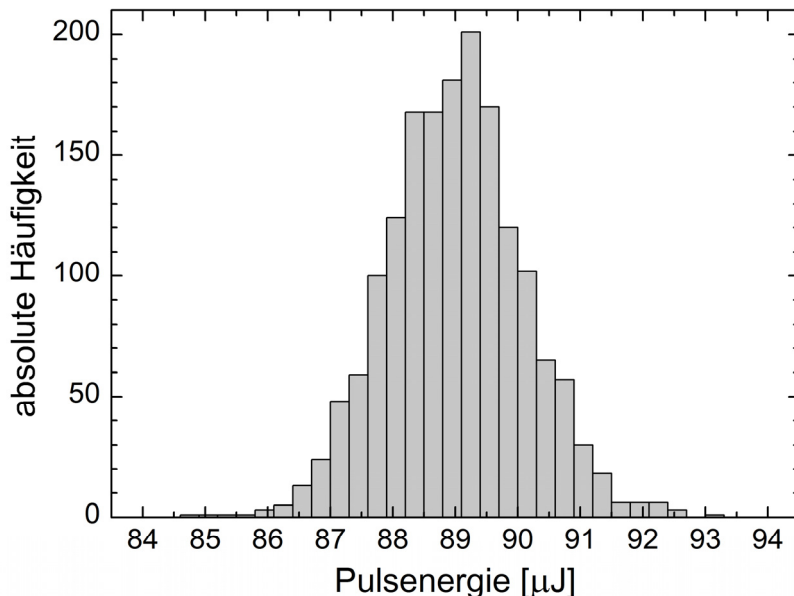


Abbildung 3: Zeitliche Fluktuation der Pulsenergie der verstärkten (ps) Laserpulse mit einer Wellenlänge von 540 nm. Dargestellt ist die Häufigkeit der Pulsenergien in einem Zeitintervall von 90s (1800 Einzelpulse).

nommen. Bei einer mittleren Pulsenergie von $89 \mu\text{J}$ ergibt sich eine Varianz von nur $1.2 \mu\text{J}$. Auf kurzen Zeitskalen liegt die relative Pulsenergiefluktuation damit unter 2%. Für längere Messzeiten konnte auf Grund der beschränkten Speicherkapazitäten der Detektoren (Ophir NOVA mit pyroelektrischem Messkopf) keine Messreihen aufgenommen werden. Anhand von sukzessiven Kurzzeitmessungen kann die relative Schwankung der Pulsenergie in einem Zeitraum von 10-30 Minuten zu 10% bis 15% abgeschätzt werden. Dieser im Vergleich zur Kurzzeitmessung höhere Wert begründet sich durch thermische Drifts der Synchronisationselektronik von (ps) Laserpuls und (ns) Pump-Laserpuls auf Grund instabiler Umgebungstemperaturen (siehe auch Abschnitt 1.5).

1.3. Zeit- und frequenz aufgelöste Messung ultra-kurzer Laserpulse

Für die vollständige Analyse der verstärkten (ps) Laserpulse wird auch die Pulsdauer sowie die Variation der Zentralfrequenz über den zeitlichen Pulsverlauf untersucht. Im folgenden Abschnitt werden der dazu entwickelte Aufbau sowie die erzielten Resultate dargestellt.

Ultra-kurze Laserpulse können mittels Autokorrelationstechniken vermessen werden. Dabei wird der zu vermessende Laserpuls in zwei Teilpulse aufgeteilt, von denen ein Puls eine variable Verzögerungstrecke durchläuft. Beide Pulse werden anschließend in einem geeigneten Medium wieder räumlich und zeitlich überlappt. Das Medium vermittelt eine intensitätsabhängige Wechselwirkung zwischen den beiden Teilpulsen, z.B. eine Polarisationsdrehung von einem der beiden Pulse. Variiert man die zeitliche Verzögerung zwischen den beiden Teilpulsen und detektiert zeitgleich die Polarisationsdrehung, so lassen sich Rückschlüsse auf die Pulsdauer des ursprünglichen Laserpulses ziehen. Bei der beschriebenen Polarisationsfensterung handelt es sich um eine Autokorrelation dritter Ordnung [20]. Daher können mit dieser Technik auch Asymmetrien im zeitlichen Intensitätsverlauf der Laserpulse gemessen werden. Prozesse zweiter Ordnung ergeben stets symmetrische Autokorrelationssignale, unabhängig vom zeitlichen Intensitätsverlauf der gemessenen Laserpulse.

Verwendet man als Detektor im Autokorrelator ein Spektrometer, so kann eine simultane zeit- und frequenz aufgelöste Messung des Laserpulses erfolgen. Diese Technik ist unter dem englischen Begriff *frequency-resolved optical gating* (FROG) bekannt. Der Vorteil der Pulscharakterisierung mittels polarisationsgefensterter FROG-Messungen liegt darin, dass sich direkt aus den gemessenen Daten sowohl die Pulsdauer als auch die Frequenzvariation über den zeitlichen Intensitätsverlauf des Laserpulses quantitativ abschätzen lassen. FROG Messungen, die z.B. auf Frequenzkonversionsprozessen beruhen, bieten diese Möglichkeit nicht. Dort muss mit aufwändigen numerischen Algorithmen der zeitliche Verlauf des elektrischen Feldes aus den Messdaten rekonstruiert werden, um Aussagen über den Laserpuls treffen zu können. Für exakte Aussagen ist dies auch für polarisationsgefensterte FROG Messungen notwendig, qualitative Ergebnisse lassen sich aber bereits direkt aus den Messdaten bestimmen.

Der in dieser Arbeit aufgebaute Autokorrelator beruht auf dem oben erwähnten Prinzip der Polarisationsfensterung. Abbildung 4 zeigt eine schematische Darstellung des verwendeten Aufbaus. Eine detaillierte Beschreibung findet sich in der Bachelor-Thesis von B. Wittrock [21]. Der zu vermessende Laserpuls ist anfangs in einem Winkel von 45° relativ zur Horizontalen polarisiert. Mittels eines Strahlteilers wird der Laserpuls im Verhältnis 0.08 zu 0.92 geteilt. Der intensivere Teilpuls (im Folgenden als Gating-Puls bezeichnet) wird über einen Spiegel umgelenkt und mittels einer Linse in das Medium fokussiert. Der schwächere Teilpuls (im Folgenden als Probe-Puls bezeichnet) durchläuft zunächst eine variable optische Verzögerungsstrecke. Anschließend passiert der Probe-Puls einen Polarisator, welcher nur die horizontale Polarisationskomponente transmittiert, wird mittels einer Linse fokussiert und im Medium mit dem Gating-Puls räumlich und zeitlich überlappt. Der Gating-Puls bewirkt innerhalb des Mediums eine Variation des Brechungsindex in Polarisationsrichtung auf Grund des optischen Kerr Effektes:

$$n_G = n_0 + n_2 \cdot I_G \quad (1.1)$$

Dabei ist n_0 der lineare Brechungsindex, n_2 der nichtlineare Brechungsindex und I_G die Intensität des Gating-Pulses. Als Medium wird Chlorbenzol in einer Quarzglasküvette verwendet, welches einen relativ hohen nichtlinearen Brechungsindex von $n_2 \approx 100 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ [22] aufweist.

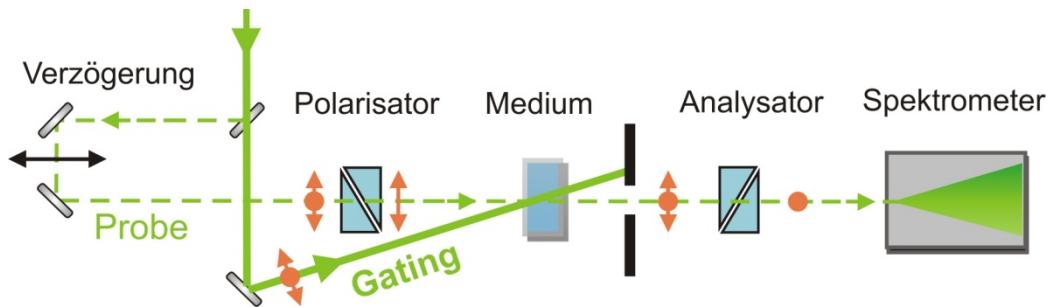


Abbildung 4: Schematische Darstellung des Aufbaus zur zeit- und frequenz aufgelösten Analyse verstärkter (ps) Laserpulse.

Da Probe- und Gating-Puls eine um 45° gedrehte Polarisations aufweisen, erscheint das Medium für den Probe-Puls als doppelbrechend mit Brechungsindizes n_0 und n_G . Der eingangs linear polarisierte Probe-Puls weist nach Propagation durch das Medium eine elliptische Polarisation auf, d.h. es existieren Polarisationskomponenten in der Vertikalen. Die Intensität der vertikalen Polarisationskomponenten ist durch den Unterschied $n_0 - n_G(\tau)$ sowie der Wechselwirkungslänge gegeben. Dabei ist τ die variable zeitliche Verzögerung von Probe- und Gating-Puls. Für koinzidente Laserpulse ($\tau = 0$) ist die Polarisationsdrehung folglich am stärksten während für $\tau \gg \tau_{pr}$, mit τ_{pr} der Pulsdauer des Probe-Laserpulses, keine Polarisationsdrehung auftritt. Nach dem Medium durchläuft der Probe-Laserpuls einen weiteren Polarisator, dessen Transmissionsrichtung vertikal orientiert ist (Analytator). Folglich passiert nur der polarisationsgedrehte Anteil der Probe-Laserstrahlung den Analytator. Die relative Auslöschung der gegeneinander verdrehten Polarisatoren beträgt $K \approx 1:6000$.

Die transmittierte Strahlung wird nach der Autokorrelation in einem eigens für diesen Zweck aufgebauten Czerny-Turner-Spektrometer spektral aufgelöst detektiert [23]. Als Detektor dient eine CCD-Zeilenkamera. Die Belichtungszeit wird dabei so kurz wie möglich gewählt (ca. 32 μs), um den störenden Untergrund durch die unverstärkten Laserpulse mit 76 MHz Wiederholrate zu unterdrücken. Mittels externer Ansteuerung wird der Erfassungszeitraum der CCD-Kamera mit dem (ps) Laserpuls synchronisiert (vergleiche Abschnitt 1.5).

Abbildung 5 zeigt ein typisches FROG-Diagramm für verstärkte (ps) Laserpulse bei einer Wellenlänge von 539 nm, wie sie mit dem in Abschnitt 1.1 und 1.2 beschriebenen Lasersystem erzeugt werden. Auf der x-Achse ist die Pulsverzögerung aufgetragen, auf der y-Achse die Frequenz des Probe-Laserpulses. Die Intensität ist farblich von blau (keine Intensität) bis dunkelrot (maximale Intensität) dargestellt. Man erkennt deutlich einen Laserpuls mit einer zeitlichen Breite des Autokorrelationssignals unter 2 ps und einer über die Pulsdauer leicht variierenden Frequenz.

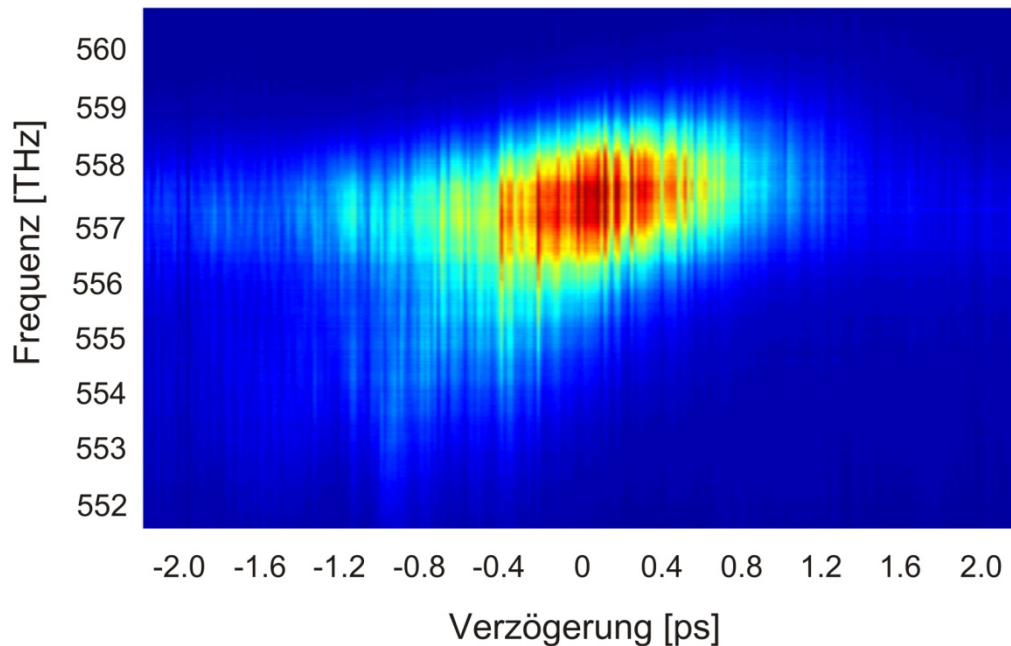


Abbildung 5: Intensität der verstärkten (ps) Laserpulse (blau: keine Intensität, dunkelrot: maximale Intensität) in Abhängigkeit von Frequenz und Verzögerungszeit.

Zur Bestimmung der Pulsdauer werden die FROG-Daten spektral integriert und über der Verzögerungszeit dargestellt. Das Resultat ist in Abbildung 6(a) dargestellt. Die schwarze Linie zeigt das Ergebnis der Integration, die rote Linie ist eine Mittelung der experimentellen Daten. Man erkennt einen leicht asymmetrischen zeitlichen Verlauf der Autokorrelationsdaten, wobei die ansteigende Flanke steiler ist als die abfallende Flanke. Für eine Abschätzung der Pulsdauer wird diese leichte Asymmetrie im Folgenden vernachlässigt. Aus der zeitlichen Breite des Autokorrelationssignals $\tau_{AC} \approx 1.8 \text{ ps}$ (FWHM) erhält man unter Annahme eines sechsförmigen Verlaufs der Intensitätseinhüllenden eine Pulsdauer von $\tau_{sech} = 0.62 \cdot \tau_{AC} \approx 1.1 \text{ ps}$.

Abbildung 6(b) zeigt das Ergebnis der zeitlichen Integration der FROG-Daten aus Abbildung 5, d.h. das Spektrum des Laserpulses. Auch hier erkennt man eine asymmetrische Verteilung der spektralen Intensität. Auf Grund der Asymmetrien von zeitlichem und spektralem Verlauf der Intensität stellen die folgenden Betrachtungen nur eine grobe Abschätzung der Bandbreiten-Begrenzung dar. Die volle Halbwertsbreite des Spektrums ergibt sich zu $\Delta\nu_p \approx 0.7$ THz. Damit ergibt sich ein Zeit-Bandbreite-Produkt von $\Delta\nu_p \cdot \tau_p \approx 0.77$. Für einen bandbreitenbegrenzten, sechsförmigen Laserpuls erwartet man ein Zeit-Bandbreite-Produkt von 0.375. Folglich sind die verstärkten Laserpulse nur annähernd bandbreitenbegrenzt. Diese Tatsache äußert sich außer in den Asymmetrien von zeitlichem und spektralem Verlauf der Intensität ebenfalls in einer Variation der Zentralfrequenz des elektromagnetischen Feldes über die Pulsdauer (*Chirp*), wie sie bereits in Abbildung 5 zu erkennen ist.

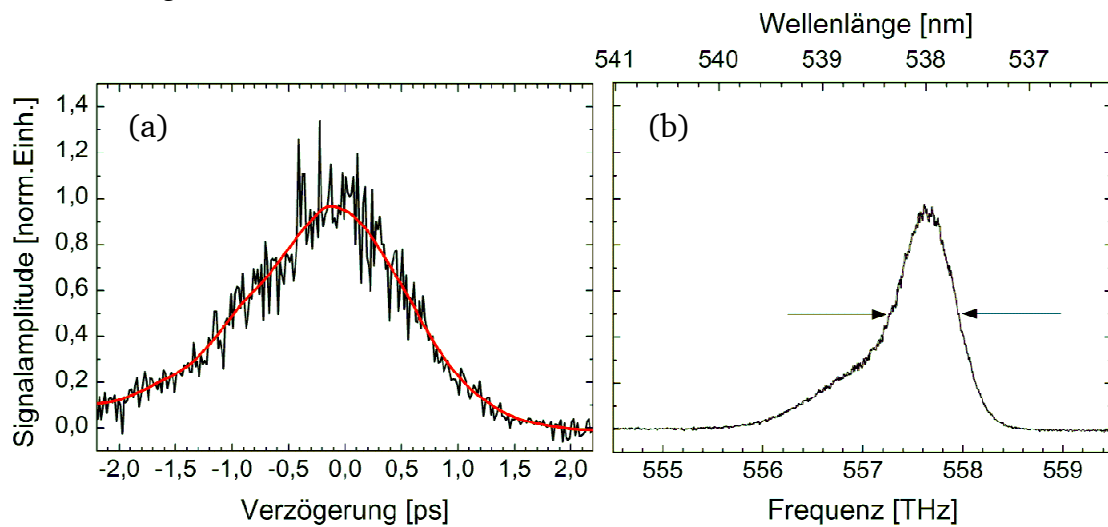


Abbildung 6: Die linke Seite (a) zeigt die spektral integrierten FROG-Daten aus Abbildung 5. Dargestellt ist die Intensität des Laserpulses über der Verzögerungszeit. Aus der Breite der Kurve ergibt sich eine Pulsdauer von ca. 1.1 ps. Die rechte Seite zeigt die zeitlich integrierten FROG-Daten. Dargestellt ist die Intensität des Laserpulses über der Frequenz bzw. Wellenlänge. Das Spektrum hat eine Breite (FWHM) von 0.7 THz.

Für eine genauere Untersuchung des Frequenzchirps wird für verschiedenen Verzögerungszeiten das Spektrum der FROG-Messung betrachtet (vertikaler Schnitt in Abbildung 5) und die Zentralfrequenz bestimmt. In Abbildung 7 ist der Verlauf der Zentralfrequenz über der Pulsverzögerung dargestellt. Es ist ein deutlicher Chirp zu erkennen. Die rote Linie stellt eine numerische Regression mittels eines Polynoms zweiten Grades dar und dient lediglich der Veranschaulichung einer komplexen Phasenevolution des elektrischen Feldes. Für quantitative Aussagen zum Chirp sowie für eine exakte Bestimmung der Pulsdauer muss eine Rekonstruktion des zeitlichen Verlaufs des elektrischen Feldes mittels numerischer Algorithmen erfolgen. Diese stehen in der Arbeitsgruppe aber bisher nicht zur Verfügung.

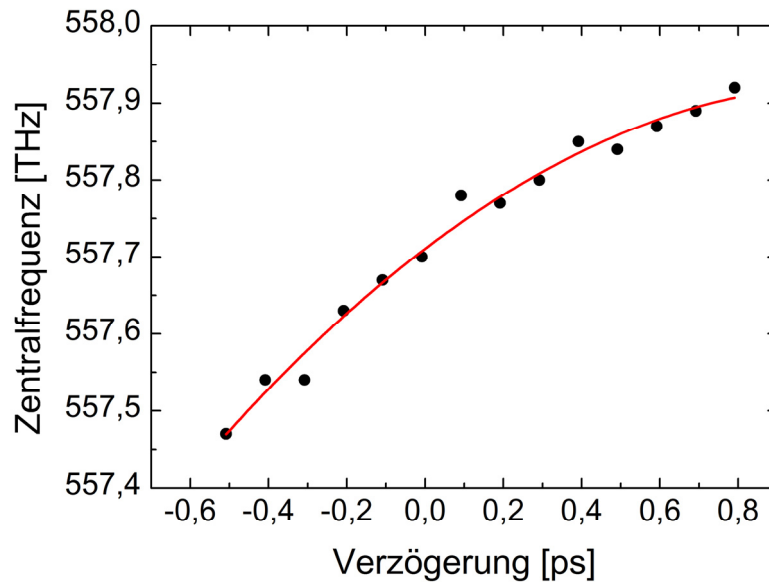


Abbildung 7: Variation der Zentralfrequenz über der zeitlichen Verzögerung von Probe- und Gating-Puls. Die rote Kurve stellt eine numerische Regression mit einem Polynom zweiten Grades dar und dient der Veranschaulichung der komplexen Abhängigkeit.

Ein Chirp entsteht, sobald ein nicht monochromatisches elektromagnetisches Feld durch ein Medium propagiert. Auf Grund der Dispersion ergeben sich unterschiedliche Phasengeschwindigkeiten der einzelnen spektralen Komponenten. Diese werden zeitlich gegeneinander verzögert, wodurch sich der Chirp ausbildet. Für die FROG-Messungen wird daher versucht, das Wechselwirkungsgebiet zwischen Probe- und Gating-Puls möglichst nahe an das Eintrittsfenster der mit Chlorbenzol gefüllten Küvette zu platzieren, um Propagationseffekte auf Grund von Dispersion innerhalb des Chlorbenzols auf den Messprozess zu minimieren.

Vermutlich bildet sich der Frequenzchirp des Pulses bereits während der Verstärkung im Farbstoffverstärker aus. Leider steht kein Aufbau zur Verfügung, um die unverstärkten Laserpulse zu charakterisieren. Laut Herstellerangaben sind die vom OPO erzeugten Pulse jedoch nahezu bandbreiten-begrenzt und weisen keinen ausgeprägten Frequenzchirp auf. Da sich außer dem Verstärker keine optischen Elemente zwischen dem OPO und dem Aufbau für FROG Messungen befinden, muss der Frequenzchirp im Verstärker entstehen.

Innerhalb des Verstärkers propagiert jeder Laserpuls eine Strecke von etwa 5-6 cm innerhalb der Farbstofflösung. Auf Grund der Dispersion der Farbstofflösung sowie der spektralen Bandbreite der Laserstrahlung ergibt sich ein annähernd linearer Frequenzchirp. Die in Abbildung 7 erkennbare Nichtlinearität des Frequenzchirps beruht vermutlich auf einer lokalen Erhitzung der Farbstofflösung während des Pumpprozesses. Inhomogenitäten im Pump-Laserprofil resultieren in einer inhomogenen Temperaturverteilung und somit einem inhomogenen Brechungsindex entlang der Propagationsrichtung. Dieser Effekt könnte den gemessenen Verlauf des Frequenzchirps erklären.

1.4. Das (ns) Pulslasersystem

Zur Realisierung von adiabatischen Prozessen in Xenon, wie sie später in Kapitel 3 dieser Arbeit diskutiert werden, wird spektral durchstimmbare Laserstrahlung im ultra-violetten Spektralbereich mit Pulsdauern von wenigen Nanosekunden benötigt. Im folgenden Abschnitt werden das verwendete Lasersystem sowie die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Modifikationen daran dargestellt.

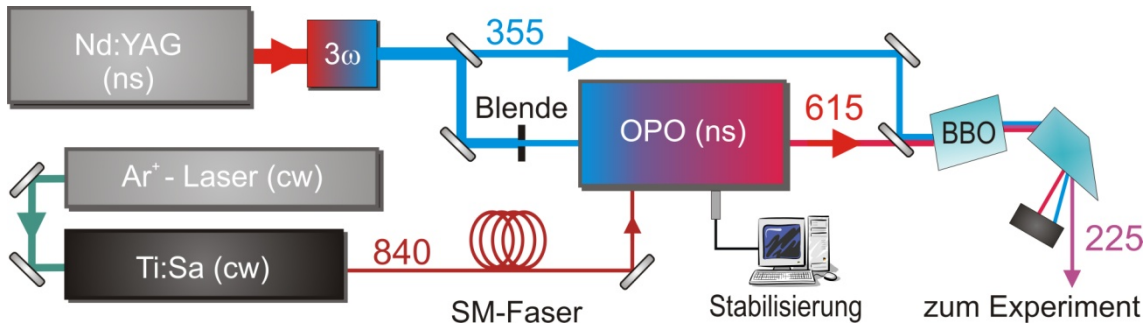


Abbildung 8: Schematische Darstellung des (ns) Lasersystems zur Erzeugung von spektral durchstimmbarer Strahlung im ultra-violetten Spektralbereich. Die angegebenen Zahlen stellen Wellenlängen in Nanometern dar.

Das Lasersystem wurde im Rahmen einer früheren Dissertation entwickelt und aufgebaut [24]. Abbildung 8 zeigt eine schematische Darstellung des Aufbaus. Die Erzeugung der (ns) Laserpulse erfolgt in einem optisch parametrischen Oszillator (OPO) mit linearer Kavität und zwei BBO-Kristallen als nichtlinearem Medium. Als Pump-Strahlung für den OPO dient die frequenzverdreifachte Ausgangsstrahlung eines gütegeschalteten Nd:YAG-Lasers mit einer Wellenlänge von 355 nm und einer Repetitionsrate von 20 Hz. Das ursprünglich verwendete Pump-Lasersystem (RSY MOPA, RoFin Sinar) wurde im Rahmen dieser Arbeit gegen ein leistungsstärkeres System (QuantaRay Prolab 230-20, Spectra-Physics) ausgetauscht. Dadurch wurden die Strahlparameter der Pump-Strahlung stark verändert, wodurch auch die Einkopplung der Pump-Strahlung in den OPO modifiziert werden musste.

Mittels injection-seeding wird longitudinal einmodige Laseroszillation im Pump-Laser erreicht, wodurch die emittierten Laserpulse nahezu bandbreiten-begrenzt sind. Der zeitliche Intensitätsverlauf ist dadurch annähernd gaußförmig mit einer Pulsdauer (FWHM der Intensität) von 8.9 ns, wodurch sich aus dem Zeit-Bandbreite-Produkt $\Delta\nu \cdot \tau \approx 0.44$ eine spektrale Breite von $\Delta\nu_{355} = 49$ MHz ergibt. Typische emittierte Pulsenergien betragen 400 mJ. Mittels einer 50:50-Strahlteilerplatte wird ein Teil dieser Strahlung zum OPO geführt, der andere Teil wird für weitere Frequenzkonversionsprozesse verwendet (siehe unten). Über einen variablen Abschwächer lässt sich die dem OPO zur Verfügung stehende Pulsenergie reduzieren. Das räumliche Strahlprofil des Pump-Lasers ist für OPO-Anwendungen optimiert. Idealerweise verwendet man zum Pumpen eines OPO ein Strahlprofil mit homogener Intensitätsverteilung, um möglichst hohe Pumpenergien bei Intensitäten unterhalb der Zerstörschwelle des Materials zu erzielen. Technisch lässt sich dies nur schwer realisieren, insbesondere bei den

benötigten hohen Pulsenergien von mehreren 100 mJ. Es bilden sich typischerweise Beugungsringe auf Grund von resonator-internen Beugungseffekten an den Laserstäben aus, welche zu lokal begrenzten hohen Spitzenintensitäten führen. Alternativ lässt sich ein räumlich gaußförmiges Strahlprofil erzeugen, welches keinerlei Beugungsringe, allerdings im Zentrum eine im Vergleich zu den Flanken hohe Spitzenintensität aufweist. Bei einem OPO-optimierten Profil wählt man eine Zwischenlösung. Das Strahlprofil entspricht einem gestauchten gaußförmigen Profil, welches nur moderate Beugungsringe aufweist (siehe Abbildung 9). Der Strahldurchmesser (FWHM der Intensität) beträgt ca. 9 mm.

Mittels einer Lochblende (Durchmesser 4 mm) wird der zentrale Teil des Strahlprofils ausgeschnitten und über geeignete Optiken zum OPO geführt. Abbildung 10(a) zeigt das räumliche Strahlprofil der Pump-Strahlung am Ort des OPO. Man erkennt eine deutliche Verbesserung des Strahlprofils durch den Einsatz der Lochblende. Eine tatsächlich homogene Intensitätsverteilung ließ sich auf Grund von Propagationseffekten nicht erzielen.

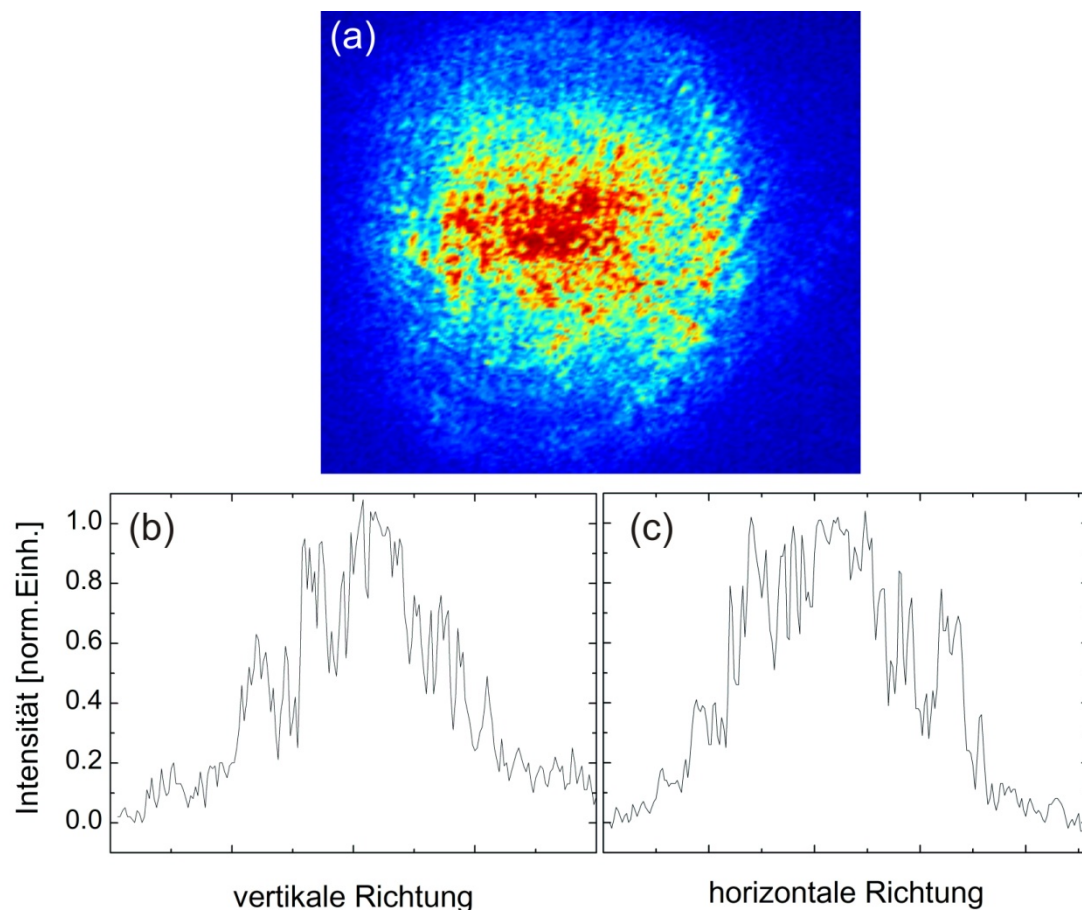


Abbildung 9: Räumliches Strahlprofil der vom Pump-Laser des (ns)-OPO emittierten Strahlung bei einer Wellenlänge von 355 nm. (a) räumliches Strahlprofil (blau: keine Intensität, dunkelrot: maximale Intensität), (b) vertikaler Schnitt durch (a), (c) horizontaler Schnitt durch (a).

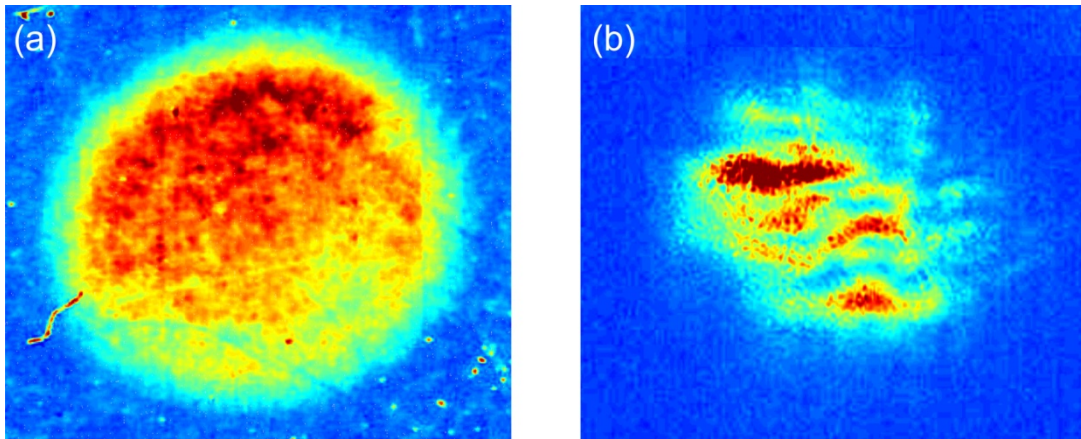


Abbildung 10: Räumliches Strahlprofil (a) der Pump-Laserstrahlung für den (ns)-OPO am Ort des OPO und (b) der vom (ns)-OPO emittierten Strahlung mit einer Wellenlänge von 615 nm.

Im OPO wird die Pump-Strahlung mittels Differenzfrequenzerzeugung in Signal-Strahlung mit einer Wellenlänge von 615 nm und Idler-Strahlung mit einer Wellenlänge von 840 nm konvertiert. Durch injection-seeding mittels kontinuierlicher Laserstrahlung wird auch hier longitudinal einmodiger Laserbetrieb realisiert. Die Seed-Strahlung bei 840 nm wird von einem schmalbandigen Titan:Sapphir-Laser (899-21, Coherent, Linienbreite <1 MHz) erzeugt und mittels einer optischen Faser zum OPO geführt.

Die Länge des OPO-Resonators wird über das Transmissionssignal der Seed-Laserstrahlung aktiv stabilisiert. Durch Variation der Seed-Laserwellenlänge kann somit die Signal-Wellenlänge kontinuierlich durchgestimmt werden. Der typische Durchstimmbereich beträgt 10 GHz. Der maximal mögliche Durchstimmbereich des Seed-Lasers von 30 GHz konnte auf Grund von instabilen Labortemperaturen nicht erreicht werden.

Die Ausgangsstrahlung des OPO ist bandbreiten-begrenzt mit einer Pulsdauer von $\tau_{615} = 4.8$ ns (FWHM der Intensität). Die entsprechende Bandbreite beträgt $\Delta\nu_{615} = 92$ MHz. Abbildung 10(b) zeigt die räumliche Intensitätsverteilung der Signal-Strahlung. Das neue räumliche Strahlprofil der Pump-Laserstrahlung weist auf Grund der vom idealen Gaußprofil abweichenden Intensitätsverteilung inhomogene Phasenfronten auf. Dadurch kommt es bei der Frequenzkonversion zu der beobachteten Filamentierung des räumlichen Signal-Profils. Allerdings konnte die Pulsenergie der Signal-Strahlung durch den neuen Pump-Laser von 3.5 mJ auf 7 mJ deutlich erhöht werden.

Die Ausgangsstrahlung des OPO wird in einem weiteren BBO-Kristall mittels Summenfrequenzerzeugung mit der dritten Harmonischen des Nd:YAG-Lasers in Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von 225 nm konvertiert (siehe Abbildung 8). Diese Strahlung dient in den späteren Experimenten als Pump-Laserstrahlung. Die maximale Pulsenergie der konvertierten Strahlung beträgt 1.1 mJ. Abbildung 11(a) zeigt die räumliche Intensitätsverteilung der Pump-Laserstrahlung. Durch einen variablen Abschwächer kann die dem Mischprozess

zur Verfügung stehende Leistung der dritten Harmonischen des Nd:YAG-Lasers stufenlos reduziert werden. Dadurch lässt sich auch die erzeugte Pulsenergie bei der Pump-Wellenlänge von 225 nm stufenlos regulieren. Die generierten Laserpulse haben einen zeitlich annähernd gaußförmigen Intensitätsverlauf mit einer Pulsdauer von $\tau_{225} = 3.8 \text{ ns}$ (siehe Abbildung 11b), welche einer spektralen Bandbreite von $\Delta\nu_{225} = 0.44/\tau_{225} \approx 116 \text{ MHz}$ entspricht.

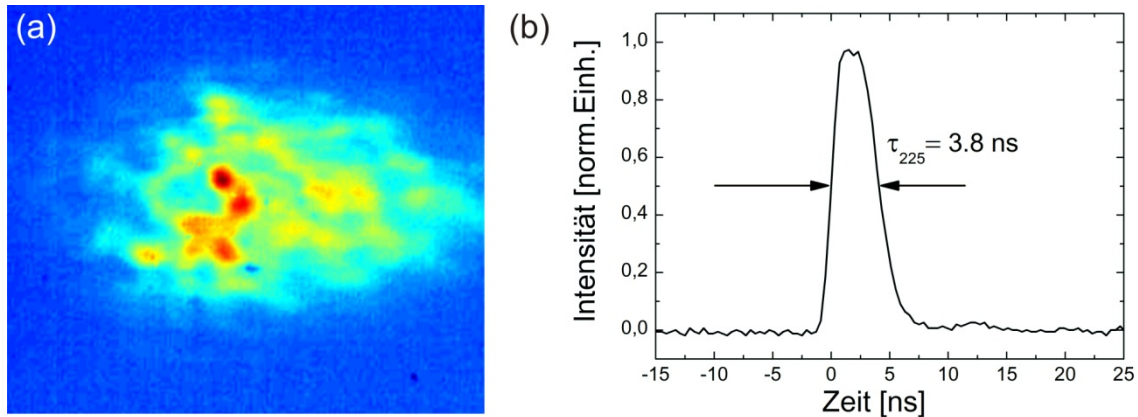


Abbildung 11: Räumliche (a) und zeitliche (b) Intensitätsverteilung der durch Frequenzkonversion der Ausgangsstrahlung des (ns)-OPO erzeugten Laserstrahlung bei einer Wellenlänge von 225 nm.

Mittels eines Pellin-Broca-Prismas wird die erzeugte Pump-Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von 225 nm von den fundamentalen Strahlungen mit Wellenlängen von 615 nm und 355 nm räumlich getrennt. Sämtliche Wellenlängen werden mit einem temperaturstabilisierten Fizeau-Interferometer bestimmt (LM 007, ATOS, relative Genauigkeit $<100 \text{ MHz}$, absolute Genauigkeit 1-2 GHz).

1.5. Synchronisation der Lasersysteme

Für die Durchführung von Experimenten mit den oben beschriebenen Lasersystemen ist es von Bedeutung, dass alle Prozesse in der richtigen zeitlichen Reihenfolge und mit der notwendigen zeitlichen Stabilität ablaufen. So beträgt zum Beispiel die Relaxationszeit des im (ps) Verstärker verwendeten Laserfarbstoffs Coumarin 153 lediglich einige 100 ps [25]. Die Pulsdauer des Pump-Laserpulses beträgt jedoch mehrere Nanosekunden. Für eine stabile Verstärkung der (ps) Laserpulse ist es notwendig, dass die zeitliche Abfolge von (ns) Pump-Laserpuls und (ps) Laserpuls keinen größeren Schwankungen unterliegt. Andernfalls kommt es zu starken Schwankungen der Pulsenergie bei den verstärkten (ps) Laserpulsen.

Die Synchronisation der Lasersysteme erfolgt mittels zweier Verzögerungsgeneratoren (DG535 und DG645, Stanford Research Systems), die zusammen über acht unabhängige Ausgangskanäle verfügen. Abbildung 12 stellt schematisch die Abfolge der einzelnen elektronischen Signalimpulse dar.

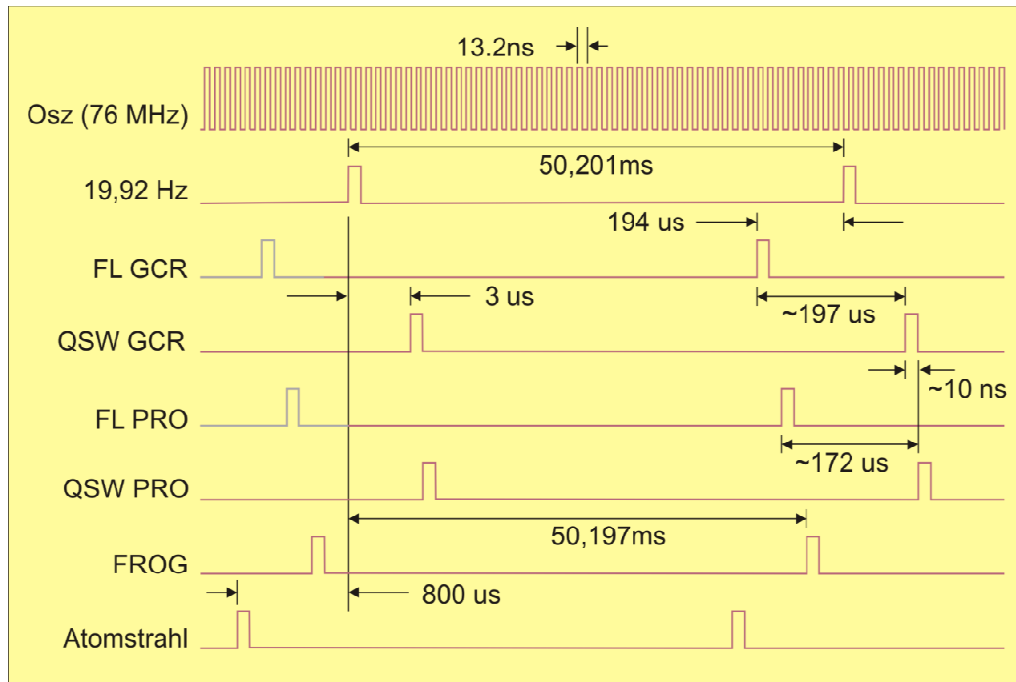


Abbildung 12: Schematische Darstellung der Synchronisation der Lasersysteme, Diagnostik und des gepulsten Atomstrahls.

Die erste Reihe repräsentiert den von einer Photodiode detektierten Pulszug mit einer Repetitionsrate von 76 MHz aus dem Ti:Sa-Oszillator (Osz). Mittels eines Signalkonverters (PRL-350ECL, Pulse Research Lab) wird das Photodiodensignal zunächst in ECL-Signalpegel konvertiert. Ein variabler Frequenzteiler (PRL-260ANT, Pulse Research Lab) dividiert das Signal durch einen Faktor ~ 380 und konvertiert es in TTL-Standard Signalleve, gefolgt von einem Frequenzteiler (PRL-230, Pulse Research Lab) mit einem festen Teilungsverhältnis von 1:10000. Als Resultat ergibt sich ein Pulszug mit einer Repetitionsrate von 19.92 Hz mit TTL-Signalleve (zweite Reihe in Abbildung 12).

Für die weitere Synchronisation muss insbesondere der thermische Drift der Verzögerungsgeneratoren berücksichtigt werden. Auf Grund von Temperaturschwankungen der Labortemperatur (bis zu 6 °C im Verlauf eines Tages) driften die an den Generatoren eingestellten Verzögerungen. Die Stärke des Driftes hängt dabei sowohl von der Erwärmung des Labors als auch der eingestellten Verzögerung ab. So erfährt zum Beispiel eine Verzögerung von 1 μ s eine thermische Verschiebung in der Größenordnung von 500 ps. Eine Verzögerung von 100 μ s unterliegt bereits einer thermischen Verschiebung von 5 ns [26]. Die von den Nd:YAG Lasern (QuantaRay GCR4 und ProLab 230) benötigten Verzögerungen zwischen dem Zünden der Blitzlampen und dem Schalten des Güteschalters von knapp 200 μ s stellen damit ein Problem dar. Eine Verschiebung des Schaltzeitpunktes des Güteschalters führt unmittelbar zu einer zeitlichen Verschiebung des vom Laser emittierten (ns) Laserpulses und zerstört somit die Synchronisation der (ns) Laserpulse mit den (ps) Laserpulsen, entweder im Farbstoffverstärker (GCR4) oder im Experiment (ProLab).

Die Lösung für dieses Problem ist in Abbildung 12, Reihe 3 und 4 dargestellt. Der Güteschalter des QuantaRay GCR4 (QSW GCR) Lasers wird mit einer nur verhältnismäßig geringen Verzögerung von 3 μ s nach dem 19.92 Hz Mastertrigger geschaltet. Dadurch unterliegt der Schaltzeitpunkt nur geringen thermischen Drifts. Die Verzögerung von 3 μ s erlaubt später eine Synchronisation der Messelektronik mit den Lasersystemen. Die Blitzlampen vom GCR4 werden kurz vor dem nächsten Puls des Mastertriggers gezündet. Die notwendige Verzögerung ist dabei die Periodendauer abzüglich der Verzögerung zwischen Blitzlampen und Güteschalter plus 3 μ s. Der thermische Drift dieser Verzögerung ist gering im Vergleich zur Verzögerung von Blitzlampen und Güteschalter und beeinflusst damit die Ausgangsleistung sowie die zeitliche Stabilität des emittierten Laserpulses nur unwesentlich. Die Reihe FL GCR (Blitzlampen QuantaRay GCR4) zeigt zwei Synchronisationspulse. Der erste Puls (grau) stammt vom vorangegangenen Synchronisationszyklus und dient als Startpunkt der (ns) Laserpulserzeugung im aktuellen Synchronisationszyklus. Der zweite Puls rechts zündet die Blitzlampen für den nachfolgenden Zyklus.

Ein weiteres Problem bei der Synchronisation der vom GCR4 generierten (ns) Laserpulse mit den (ps) Laserpulsen liegt in der Ansteuerung des Güteschalters. Um den Schaltprozess zu initiieren ist ein Eingangssignallevel von 5-10 V notwendig. Die eingesetzten Verzögerungsgeneratoren geben nur eine Signalamplitude von 4 V aus. Daher ist es notwendig den generierten Signalpuls zu verstärken. Dabei muss besonders darauf geachtet werden, dass der Verstärker dem Signalpuls keine zusätzliche zeitliche Variation aufprägt. Anstelle eines einfachen analogen Verstärkers wird ein zeitlich stabiler Pulsgenerator (TGP110, TTI) verwendet. Dieser verstärkt das vom Verzögerungsgenerator erzeugte Signal variabel auf 5 V bis 10 V. Die interne Laufzeit des Signalpulses von ca. 100 ns wird mittels des Verzögerungsgenerators kompensiert. Die durch den Pulsgenerator verursachte zeitliche Schwankung des Signals beträgt weniger als 100 ps und ist damit nicht relevant für den optischen Verstärkungsprozess im Farbstoffverstärker.

Die Synchronisation des QuantaRay ProLab (Reihen FL PRO bzw. QSW Pro in Abbildung 12) erfolgt völlig analog. Allerdings wird auf Grund der neueren Bauweise des ProLab im Vergleich zum GCR4 nur noch eine Verzögerung von ca. 172 μ s zwischen dem Zünden der Blitzlampen und dem Öffnen des Güteschalters benötigt. Der Schaltzeitpunkt des Güteschalters liegt ca. 10 ns nach dem Schaltzeitpunkt des Güteschalters des GCR4. Diese Verzögerung gleicht Laufzeitunterschiede der erzeugten Laserpulse auf dem Weg zum Experiment aus und ermöglicht dort koinzidente (ps) und (ns) Laserpulse.

Die vorletzte Reihe in Abbildung 12 (mit der Bezeichnung FROG) veranschaulicht die Synchronisation der (ps) Laserpulserzeugung mit dem Aufbau zur Pulsanalyse. Die FROG-Spektren werden mittels einer extern synchronisierten CCD-Zeilenkamera ausgelesen. Die Ansprechzeit der CCD-Kamera ist mit ca. 10 μ s größer als die zur Verfügung stehenden Verzögerung von 3 μ s zwischen dem Mastertrigger (19.92 Hz) und der Laserpulserzeugung. Daher ist es auch hier notwendig, die Erfassung der CCD-Kamera bereits im vorangegangenen Synchronisationszyklus zu initiieren.

ronisationszyklus zu starten. Die minimale Belichtungszeit von $32\text{ }\mu\text{s}$ ist länger als die durch die große Verzögerung auftretenden thermischen Drifts der Verzögerungszeit von ca. $2\text{--}3\text{ }\mu\text{s}$ [26]. Um die zeitliche Stabilität der Verzögerung von (ps) und (ns) Laserpulsen nicht unnötig zu verschlechtern, wurde darauf verzichtet den zeitlichen Vorlauf von $3\text{ }\mu\text{s}$ auf mehr als $10\text{ }\mu\text{s}$ zu erhöhen.

Die letzte Reihe in Abbildung 12 mit der Bezeichnung Atomstrahl zeigt die zeitliche Position des Signalpulses zum Öffnen der im Experiment verwendeten gepulsten Düse (siehe Abschnitt 1.6). Damit sich der erzeugte Atomstrahl zeitgleich mit den Laserpulsen im Wechselwirkungsgebiet befindet, ist es notwendig die Düse ca. $800\text{ }\mu\text{s}$ vor dem Start der Laserpulerzeugung zu öffnen. Dies erfolgt wieder durch Erzeugung des Signalpulses im vorangegangenen Synchronisationszyklus. Die Düse bleibt für ca. $410\text{ }\mu\text{s}$ geöffnet, so dass auch hier ein thermischer Drift des Signalpulses von wenigen Mikrosekunden keinen Einfluss auf die Synchronisation mit den Laserpulsen hat.

1.6. Das Vakuumsystem

Ziel dieser Arbeit ist die Erzeugung von vakuum-ultravioletter (VUV) Strahlung durch Frequenzkonversion von ultra-kurzen (ps) Laserpulsen. Die generierten Wellenlängen liegen dabei unterhalb von 110 nm . Unter Standardbedingungen (Druck 1013 mbar , Temperatur $20\text{ }^{\circ}\text{C}$) beträgt die Reichweite dieser Strahlung in Luft lediglich wenige Mikrometer. Typische Fenstermaterialien für den VUV-Spektralbereich wie Magnesiumfluorid (MgF_2), Lithiumfluorid (LiF_2) oder Calciumfluorid (CaF_2) transmittieren nur Licht mit Wellenlängen oberhalb von 120 nm bzw. 130 nm . Für kürzere Wellenlängen existieren keinerlei Fenstermaterialien. Daher ist es notwendig die VUV-Strahlung direkt in einer Vakuumumgebung zu erzeugen und zu detektieren. In diesem Abschnitt wird der für alle im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente verwendete Vakuumaufbau beschrieben.

Abbildung 13 zeigt den differentiell gepumpten Vakuumaufbau. Die Apparatur besteht aus einer Düsenkammer und einem Vakuumspektrometer (VM502, Acton Research), welche durch zwei Turbomolekularpumpen (Leybold Turbovac 151 [Düsenkammer] und Pfeiffer TPU 521 [Vakuumspektrometer]) mit vorgeschalteter Drehschieberpumpe (Trivac D40B, Leybold) evakuiert werden. In der Düsenkammer wird mittels einer gepulsten Düse (General Valve, Öffnungsdurchmesser 0.8 mm , Öffnungswinkel $\approx 90^{\circ}$) ein horizontal verlaufender Atomstrahl aus Xenon-Atomen erzeugt. Der typische Stagnationsdruck der Düse beträgt 400 mbar , der maximale Vordruck liegt bei 1300 mbar . Bei 400 mbar Vordruck werden in der Vakuumapparatur Arbeitsdrücke von ca. $5 \cdot 10^{-4}\text{ mbar}$ erzielt. Die freie Weglänge von VUV-Strahlung beträgt dann bereits über 100 m .

Die Laserstrahlung wird später in die Vakuumkammer fokussiert und wechselwirkt mit dem Atomstrahl ca. 1 mm entfernt von der Düse. Die Dichte der Xenon-Atome im Wechselwirkungsgebiet kann zu $N \approx 5 \cdot 10^{16}\text{ cm}^{-3}$ abgeschätzt werden [27]. Die mittlere Geschwindigkeit \bar{v}_{Xe} lässt sich gemäß der Formel

$$\bar{v}_{Xe} = \sqrt{\frac{2\gamma kT}{m(\gamma-1)}} \quad (1.2)$$

berechnen [28]. Mit dem Adiabatenexponenten für Edelgase $\gamma = 5/2$ und der Atommasse von Xenon $m_{Xe} = 131.1$ amu ergibt sich bei einer Temperatur von $T = 298$ K eine mittlere Geschwindigkeit der Atome von $\bar{v}_{Xe} \approx 307$ m/s. Bei der beschriebenen Geometrie der Düse beträgt die maximale Transversalkomponente der Geschwindigkeit $v_{\perp} \approx 207$ m/s. Die Dopplerverbreiterung $\Delta\nu_D$ eines atomaren Übergangs errechnet sich daraus gemäß

$$\Delta\nu_D = 2 \cdot \frac{v_{\perp}}{c} \cdot \nu_0 \quad (1.3)$$

mit der entsprechenden Resonanzfrequenz ν_0 des betrachteten atomaren Übergangs im Xenon-Atom sowie der Lichtgeschwindigkeit c .

Die einfallende Laserstrahlung sowie die erzeugte VUV-Strahlung kopropagieren vom Atomstrahl aus in das Vakuumspektrometer. Der Eintrittspalt des Spektrometers erlaubt die Variation des Auflösungsvermögens und trennt zusätzlich die Düsenkammer vom eigentlichen Spektrometer. Die optimale Auflösung lässt sich erreichen, wenn die Laserstrahlung in die Ebene des Eintrittspaltes fokussiert wird. Um die für die Frequenzkonversion notwendigen Intensitäten zu erzielen,

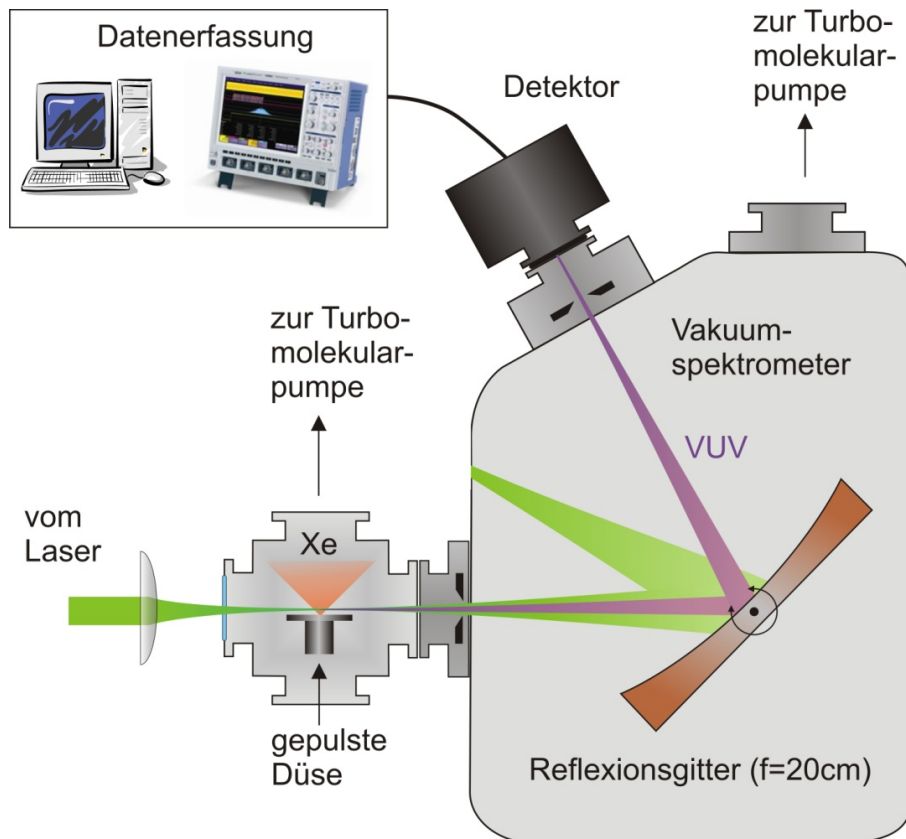


Abbildung 13: Schematische Darstellung des Vakuumsystems zur Erzeugung und zum Nachweis von vakuum-ultravioletter Strahlung.

wird die Laserstrahlung in die Ebene des Atomstrahls fokussiert. Diese liegt ca. 8.5 cm vor dem Eintrittspalt. Dadurch reduziert sich die erzielbare Auflösung des Spektrometers bei minimal geöffnetem Eintrittspalt von 0.12 nm auf ~ 0.3 nm. Durch die verschobene Fokusebene vergrößert sich der Strahldurchmesser der Laserstrahlung am Ort des Eintrittspaltes. Um die Intensität der im Spektrometer propagierenden Laserstrahlung nicht zu reduzieren, wird der Eintrittspalt soweit geöffnet, dass die Laserstrahlung den Eintrittspalt vollständig passieren kann. Dadurch reduziert sich die Auflösung des Spektrometers weiter auf > 1 nm. Für die durchgeführten Experimente ist dies ausreichend.

Im Spektrometer werden die verschiedenen Laserstrahlungen mittels eines holographischen Reflexionsgitters (1200 Linien/mm) räumlich getrennt. Die erzeugte VUV-Strahlung passiert den Austrittspalt des Spektrometers und wird mittels eines Elektronenvervielfachers (R595, Hamamatsu, $U_B \approx 4.0$ kV) oder einer Vielkanalplatte (Hamamatsu, $U_B \approx 2.5$ kV) detektiert. Das Ausgangssignal der Detektoren kann wahlweise mit einem digitalen Oszilloskop (Waverunner 104Xi, LeCroy, Bandbreite 1 GHz, Anstiegszeit 400 ps, Abtastrate 10 GS/s) direkt erfasst werden oder in einen boxcar-gated Averager (SR250, Stanford Research Systems) integriert und mit einem PC verarbeitet werden.

1.7. Aufbau eines Farbstoffverstärkers für (ps) Laserpulse

Für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente wird zur Verstärkung von (ps) Laserpulsen im sichtbaren Spektralbereich ein modifizierter kommerzieller Farbstoffverstärker (PDA2, Spectra Physics) verwendet, siehe Abschnitt 1.2. Durch die Bauweise dieses Verstärkers beträgt die maximal erreichbare Pulsenergie der verstärkten (ps) Laserpulse $150 \mu\text{J}$ bei einer Wellenlänge von 540 nm. Für viele Prozesse, z.B. die Erzeugung intensiver, spektral breitbandiger Spektren (siehe Abschnitt 3.6.1) oder zur Realisierung adiabatischer Prozesse mit (ps) Laserpulsen, sind Pulsenergien von ≥ 1 mJ notwendig. Außerdem wird durch den Verstärker die ursprüngliche räumliche Intensitätsverteilung der (ps) Laserpulse (siehe Abbildung 14(a)) deutlich verzerrt (siehe Abbildung 14(b)). Die Ursache dafür liegt in einem veralteten Design der einzelnen Verstärkerstufen.

Zur Steigerung der maximalen Pulsenergie sowie zur Verbesserung des Strahlprofils der verstärkten (ps) Laserpulse wurde im Rahmen dieser Arbeit begonnen einen neuen Farbstoffverstärker mit einem modernen Design der einzelnen Verstärkerstufen aufzubauen. Dabei wird das Prinzip eines dreistufigen Verstärkungsprozesses beibehalten.

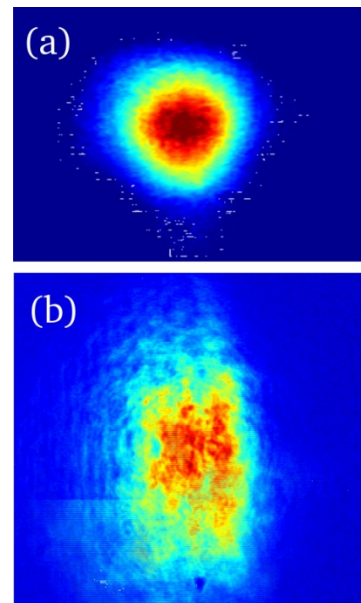


Abbildung 14: Räumliche Intensitätsverteilung der (ps) Laserstrahlung (a) vor und (b) nach der Verstärkung im kommerziellen Farbstoffverstärker.

1.7.1. Design der neuen Verstärkerstufen

Die Verstärkung der (ps) Laserpulse erfolgt im kommerziellen Farbstoffverstärker in rechteckigen Durchflussküvetten, durch welche die Farbstofflösung als aktives Medium unter hohem Druck hindurch gepumpt wird. Insgesamt besteht der Verstärker aus drei solcher Zellen, siehe dazu auch Abbildung 2. Die ersten beiden Stufen unterliegen einer transversalen Pumpgeometrie, d.h. die Pump-Laserstrahlung zur Erzeugung einer Besetzungsinversion in der Farbstofflösung wird senkrecht zum Strahlweg der (ps) Laserpulse eingestrahlt (siehe Abbildung 15). Auf Grund des Beerschen Absorptionsgesetzes sinkt die in der Farbstofflösung deponierte Pumpenergie exponentiell mit dem Abstand zum Eintrittsfenster der Pump-Laserstrahlung (Pumpfenster). Die (ps) Laserstrahlung propagiert im kommerziellen Verstärker entlang des Strahlweges A in Abbildung 15. Die maximale Verstärkung ergibt sich für den Fall, dass das Zentrum der räumlichen Intensitätsverteilung der einfallenden (ps) Laserstrahlung möglichst nah am Pumpfenster entlang propagiert. Dadurch werden jedoch zum einen Teile des Strahlprofils am Pumpfenster abgeschnitten. Zum anderen wird die dem Pumpfenster abgewandte Hälfte des Strahlprofils der (ps) Laserstrahlung auf Grund der inhomogenen Energieverteilung im Medium schlechter verstärkt als die dem Pumpfenster zugewandte Seite des Strahlprofils. Als Folge dessen ergibt sich am Ausgang des Verstärkers ein elliptisches Strahlprofil mit einer horizontal relativ scharf begrenzten räumlichen Intensitätsverteilung auf der einen Seite und einer diffus auslaufenden Intensitätsverteilung auf der anderen Seite, siehe Abbildung 14 (b).

Dieses Problem der Verzerrung der räumlichen Intensitätsverteilung der verstärkten (ps) Laserstrahlung lässt sich dadurch lösen, dass sämtliche räumlichen Anteile des Strahlprofils der einfallenden (ps) Laserstrahlung die gleichen Inhomogenitäten im optisch gepumpten Bereich der Farbstofflösung durchlaufen. Experimentell lässt sich dies realisieren, indem die (ps) Laserstrahlung in einem

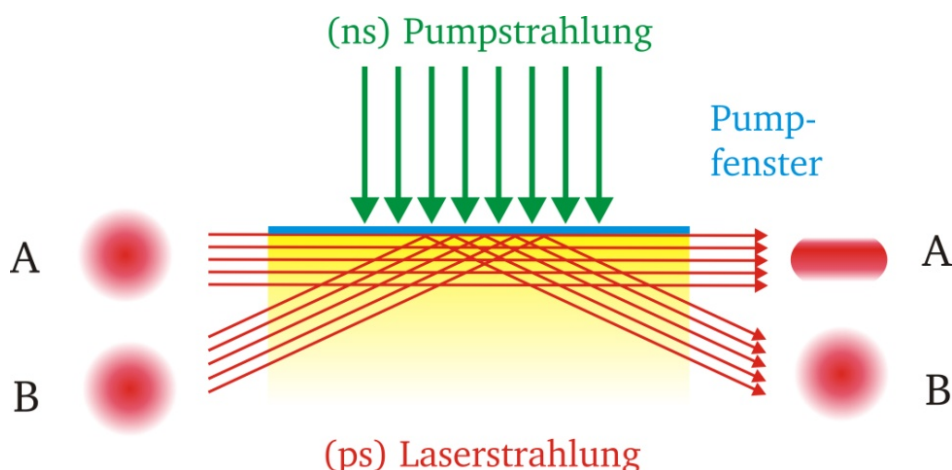


Abbildung 15: Im Gegensatz zur konventionellen Strahlführung (Pfad A) der zu verstärkenden (ps) Laserstrahlung (rot) bei transversaler Pumpgeometrie basiert die off-axis-Geometrie auf der Totalreflexion der (ps) Laserstrahlung am Eintrittsfenster der Pump-Strahlung (Pfad B).

kleinen Winkel zum Eintrittsfenster der Pump-Laserstrahlung in die Farbstoffzelle einfällt. Die Strahlung wird am Fenster totalreflektiert und propagiert anschließend wiederum in einem kleinen Winkel zum Ausgang der Farbstoffküvette, siehe Strahlweg B in Abbildung 15. Durch diese *off-axis*-Geometrie erfährt die (ps) Laserstrahlung eine räumlich homogene Verstärkung innerhalb der Farbstoffzelle und das räumliche Strahlprofil bleibt erhalten [29].

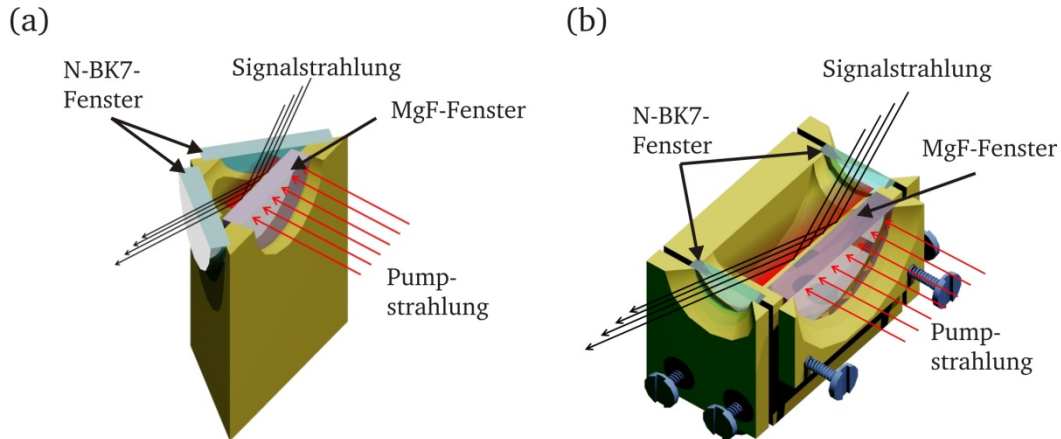


Abbildung 16: Technische Umsetzung der ersten (a) und zweiten (b) Verstärkerstufe des neuen Farbstoffverstärkers mit einer *off-axis*-Verstärkungsgeometrie. Die Farbstofflösung fließt von oben nach unten durch die Zellkörper.

Technische Umsetzung der ersten und zweiten Verstärkerstufe

Für die technische Umsetzung der *off-axis*-Verstärkungsgeometrie im neuen Farbstoffverstärker wurden in Anlehnung an [29] neue Durchflusszellen für die Farbstofflösung entwickelt. Die Totalreflektion der (ps) Laserstrahlung am Eintrittsfenster der Pump-Laserstrahlung erfordert ein Fenstermaterial mit einem niedrigeren Brechungsindex als die Farbstofflösung. Das Pumpfenster besteht daher aus Magnesiumfluorid mit einem Brechungsindex von $n_{MgF} \approx 1.378$ [30]. Als Lösungsmittel wird Ethylenglycol mit einem Brechungsindex von $n_{Eg} \approx 1.431$ verwendet [29]. Abbildung 16 zeigt die technische Umsetzung der neuen Farbstoffzellen für die erste und zweite Verstärkerstufe. Eine detaillierte Beschreibung findet sich in [31].

Technische Umsetzung der dritten Verstärkerstufe

Die dritte und letzte Verstärkerstufe des neuen Farbstoffverstärkers ist in longitudinaler Pumpgeometrie ausgelegt, d.h. Pump-Laserstrahlung und (ps) Laserstrahlung propagieren annähernd kollinear durch die Farbstofflösung. Dadurch ist es möglich große Strahldurchmesser und hohe Pumpenergien zu verwenden und die vorverstärkten (ps) Laserpulse noch weiter zu verstärken. Außerdem wird diese Farbstoffzelle im Gegensatz zum kommerziellen Verstärker mehrfach von der (ps) Laserstrahlung durchlaufen. Diese Geometrie erlaubt eine besonders effiziente Ausnutzung der Pump-Pulsenergie, da der (ns) Pump-Laserpuls deutlich länger ist als der (ps) Laserpuls und somit eine mehrfache Wechselwirkung

der beiden Laserpulse ermöglicht. Die (ps) Laserstrahlung propagiert jeweils unter leichten Winkeln bezüglich der Pump-Laserstrahlung durch die Farbstoffzelle, so dass sich die typische Bow-Tie-Geometrie ergibt, siehe Abbildung 17. Die Farbstoffzelle ist rechteckig und wird an den Stirnseiten von zwei antireflexbeschichteten Kronglasfenstern begrenzt. Die Länge der Zelle ist vergleichsweise kurz, um einen guten räumlichen Überlapp von Pump-Strahlung und (ps) Laserstrahlung in der gesamten Zelle für relative Winkel zwischen den beiden Laserstrahlungen von bis zu 15° zu ermöglichen. Dadurch können kompakte geometrische Abmessungen der letzten Verstärkerstufe gewährleistet werden.

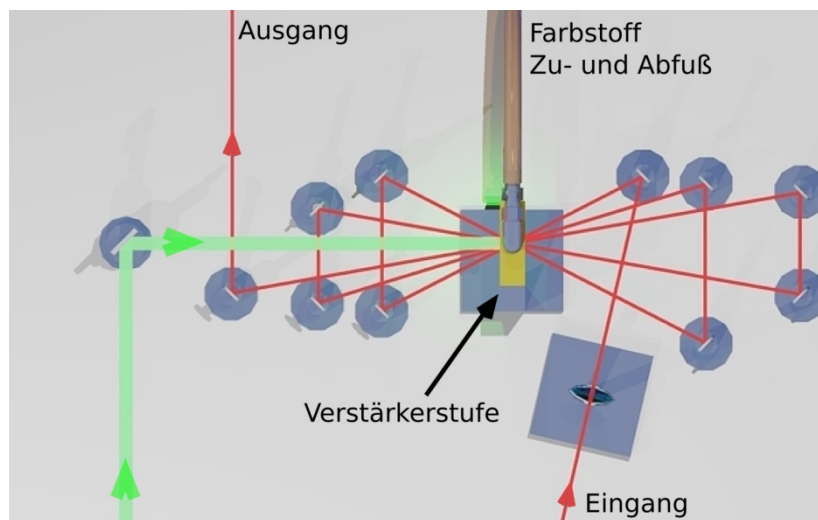


Abbildung 17: Schematische Darstellung der Bow-Tie-Geometrie der dritten Verstärkerstufe. Die Signal-Strahlung (rot) propagiert mehrfach durch die Farbstoffzelle, welche durch die Pump-Laserstrahlung (grün) longitudinal gepumpt wird.

1.7.2. Design des Farbstoffverstärkers

Abbildung 18 zeigt eine schematische Darstellung des neu entwickelten Farbstoffverstärkers für (ps) Laserstrahlung im sichtbaren Spektralbereich. Um die Einsatzfähigkeit des kommerziellen Verstärkers während der Entwicklungsphase des neuen Verstärkers zu erhalten, wird der neue Verstärker zunächst für (ps) Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von ca. 570 nm ausgelegt. Dies ermöglicht die Verwendung von Rhodamin 6G als Laserfarbstoff und ein optisches Pumpen des Farbstoffs mittels Strahlung bei der zweiten Harmonischen (Wellenlänge 532 nm) der Ausgangsstrahlung des Nd:YAG-Pump-Lasers, siehe dazu auch Kapitel 1.2. Die Strahlung der dritten Harmonischen bei einer Wellenlänge von 355 nm steht damit weiterhin ausschließlich dem kommerziellen Verstärker zur Verfügung. Die Pulsenergie der (ns) Pump-Laserstrahlung wird über zwei polarisierende Strahlteilerwürfel (PSTW) sowie zwei $\lambda/2$ -Verzögerungsplatten variabel auf alle drei Verstärkerstufen aufgeteilt. Typische Teilungsverhältnisse betragen in etwa 5:10:85. Für die ersten beiden Verstärkerstufen wird die Pump-Laserstrahlung mittels zweier Zylinderlinsen (ZL) in die Farbstofflösung fokussiert. Für die dritte Verstärkerstufe erfolgt keine weitere Strahlformung.

Die (ps) Laserstrahlung propagiert unter einem Winkel in die Farbstoffzelle der ersten Verstärkerstufe. Auf Grund von Brechung beim Eintritt in die Farbstoffzelle propagiert die (ps) Laserstrahlung innerhalb der Zelle auf dem für die *off-axis*-Geometrie notwendigen Strahlweg. Um eine hinreichende Leistungsdichte der (ps) Laserstrahlung in der Farbstofflösung zu erzielen, wird die Strahlung außerdem mittels einer Sammellinse *hinter* die Farbstoffzelle fokussiert. Dadurch ergibt sich ein konvergenter Strahlverlauf innerhalb der Zelle. Solange der Strahldurchmesser der Pump-Laserstrahlung und damit der optisch gepumpte Bereich der Farbstofflösung größer sind als der Strahldurchmesser der (ps) Laserstrahlung, hat diese Strahlgeometrie innerhalb der Zelle keinen Einfluss auf den Verstärkungsprozess. Die Position der Fokusebenen hinter der Zelle ermöglicht die Positionierung eines Pinhole (PH, Durchmesser $100\ \mu\text{m}$) direkt im Fokus der Linse. Durch diese räumliche Filterung wird derjenige Anteil der emittierten Fluoreszenz aus der ersten Verstärkerstufe, welcher in Richtung der zweiten Verstärkerstufe propagiert, stark unterdrückt. Diese Fluoreszenzstrahlung würde ansonsten in der zweiten Verstärkerstufe die Verstärkung der (ps) Laserstrahlung stark beeinträchtigen und stattdessen lediglich verstärkte Spontanemission liefern (*amplified spontaneous emission, ASE*).

Nach dem Pinhole wird die (ps) Laserstrahlung wieder kollimiert und mittels einer weiteren Linse durch die zweite Verstärkerstufe hindurch fokussiert. Hinter dieser Stufe steht zurzeit nicht genügend Raum zur Verfügung, um einen weiteren Pinhole am Ort des zweiten Fokus zu platzieren und wiederum eine räumliche Filterung der ASE vorzunehmen. Nach der Verstärkung in der zweiten Stufe wird die (ps) Laserstrahlung kollimiert und über geeignete Strahlführungsoptiken mehrfach durch die dritte Verstärkerstufe geführt.

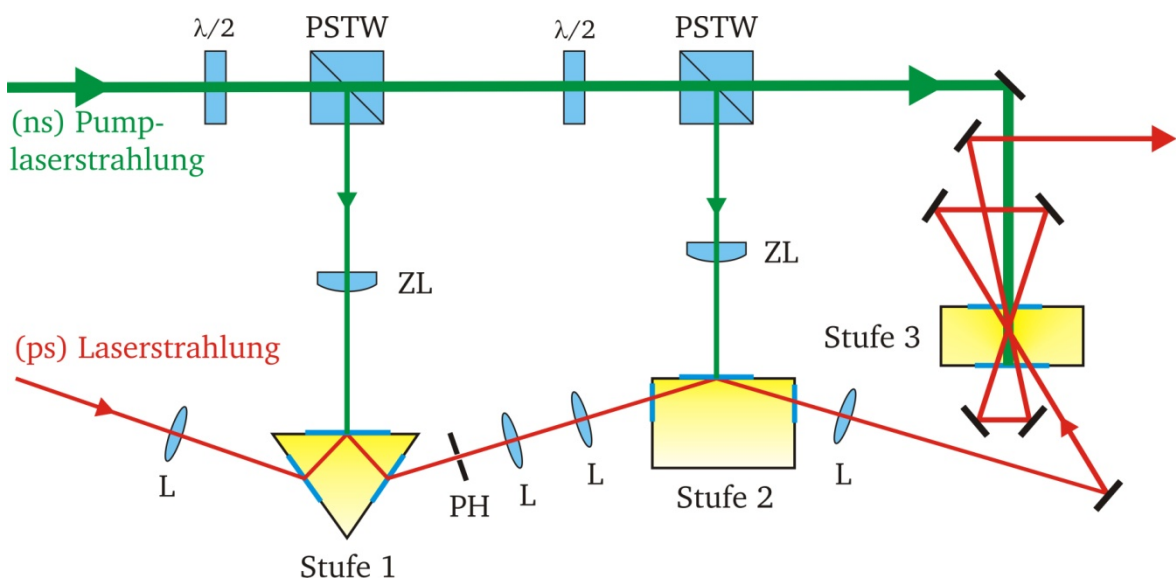


Abbildung 18: Schematische Darstellung des neu entwickelten Farbstoffverstärkers, Erläuterungen siehe Text.

1.7.3. Charakterisierung des Farbstoffverstärkers

Im folgenden Abschnitt werden kurz die charakteristischen Daten des Farbstoffverstärkers im aktuellen Stadium der Entwicklung aufgeführt.

Spektrale Verstärkungsbandbreite des Verstärkers

Mit dem in Abbildung 18 dargestellten Farbstoffverstärker und der Verwendung von Rhodamin 6G als Laserfarbstoff können (ps) Laserpulse im Wellenlängenbereich von 560 nm bis 600 nm verstärkt werden (siehe Abbildung 19). Durch die Verwendung von Ethylenglycol anstelle von Ethanol als Lösungsmittel erfahren die Laserfarbstoffe eine leichte spektrale Verschiebung der Absorptions- und Emissionsbanden hin zu längeren Wellenlängen (Verstärkungsbereich Rhodamin 6G gelöst in Ethanol: 559 nm bis 576 nm [32]). Dies muss bei der Wahl des Laserfarbstoffes berücksichtigt werden. Im Fall von Rhodamin 6G erweitert sich der Verstärkungsbereich um ca. 20 nm in den langwelligen Bereich [31]. Erste spektroskopische Untersuchungen weiterer Laserfarbstoffe zeigen, dass prinzipiell der gesamte Spektralbereich von 560 nm bis 650 nm abgedeckt werden kann [31].

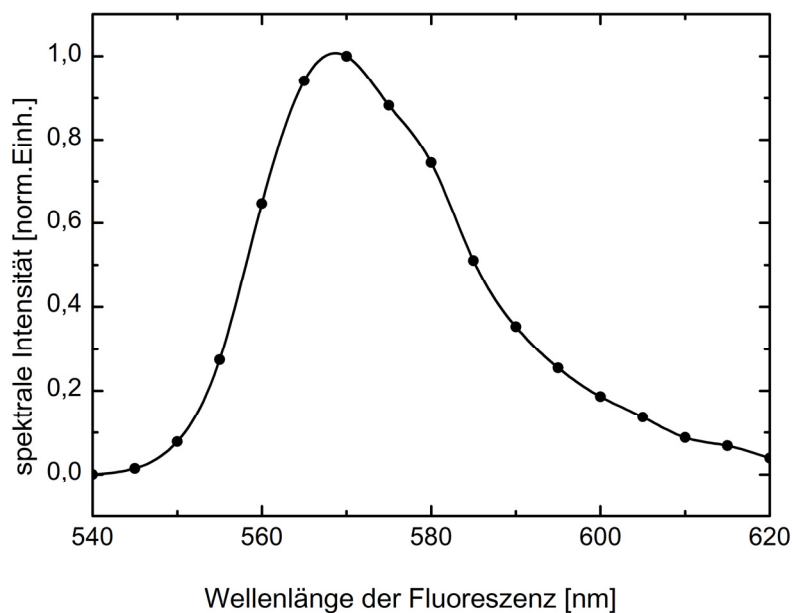


Abbildung 19: Spektrale Intensitätsverteilung der Fluoreszenz von Rhodamin 6G gelöst in Ethylenglycol bei Anregung mit Strahlung bei einer Wellenlänge von 532 nm.

Räumliche Intensitätsverteilung der verstärkten (ps) Laserpulse

Abbildung 20 zeigt die räumliche Intensitätsverteilung der (ps) Laserstrahlung an verschiedenen Orten des Farbstoffverstärkers. Vor dem Verstärker weist die Strahlung ein annähernd gaußförmiges räumliches Strahlprofil auf (siehe Abbildung 20(a)). Diese Intensitätsverteilung bleibt auch nach den Verstärkungsprozessen in der ersten und zweiten Verstärkerstufe erhalten (siehe Abbildung 20(b) und (c)). Die Strahlprofile wurden jeweils hinter der entsprechenden Verstärkerstufe aufgenommen. Da der Strahldurchmesser der (ps) Laserstrahlung

auf Grund unterschiedlicher Fokussierungen entlang der Propagationstrecke im Verstärker variiert, sind die einzelnen Strahlprofile in Abbildung 20 nicht maßstäblich.

Bei der Verstärkung in der dritten, longitudinal gepumpten, Verstärkerstufe wird die räumliche Intensitätsverteilung der (ps) Laserstrahlung deutlich moduliert. Anstelle einer gaußförmigen Intensitätsverteilung ergibt sich eine Verteilung in Form eines verwaschenen Kreuzes (siehe Abbildung 20(d)). Die Ursache für diese Intensitätsverteilung findet sich im Strahlprofil der Pump-Laserstrahlung. Dieses weist am Ausgang des Nd:YAG-Lasers deutliche Beugungsringe auf, wie sie bereits in Kapitel 1.4 diskutiert wurden. Auf Grund von Propagationseffekten auf dem Weg vom Nd:YAG-Laser bis zum Wechselwirkungsgebiet im Farbstoffverstärker (ca. 3 m) ergibt sich eine inhomogene Verteilung der räumlichen Intensität der Pump-Laserstrahlung in der dritten Verstärkerstufe. Durch die longitudinale Pumpgeometrie werden diese Inhomogenitäten direkt auf das Strahlprofil der (ps) Laserstrahlung übertragen. Für eine Verbesserung des vom Verstärker emittierten Strahlprofils der verstärkten (ps) Laserpulse ist eine weitere Modifikation der dritten Verstärkerstufe notwendig.

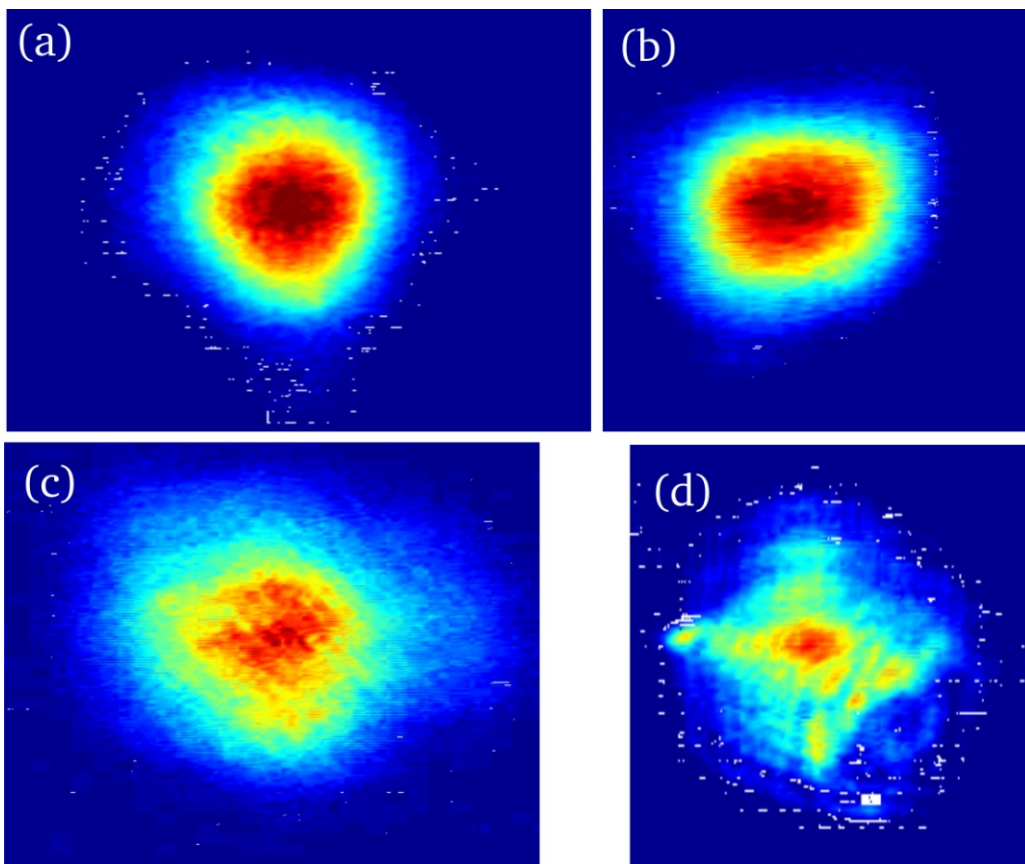


Abbildung 20: Räumliche Intensitätsverteilung der (ps) Laserstrahlung (a) vor dem Farbstoffverstärker, (b) nach der ersten Verstärkerstufe, (c) nach der zweiten Verstärkerstufe und (d) nach der dritten Verstärkerstufe. Die Abbildungen sind nicht maßstäblich.

Pulsenergie der verstärkten (ps) Laserpulse

In der aktuellen Konfiguration steht für den Verstärker eine Pulsenergie der Pump-Laserstrahlung von ca. 150 mJ zur Verfügung. Der Verstärkungsfaktor der ersten Stufe kann zu ca. 500-1000 abgeschätzt werden, in der zweiten Stufe erfolgt noch einmal eine Verstärkung um ca. einen Faktor 50. Die letzte Stufe weist einen Verstärkungsfaktor von 5-10 für ein dreimaliges Durchlaufen der Zelle von der (ps) Laserstrahlung auf. Insgesamt kann bisher ein Verstärkungsfaktor von ~ 200000 erzielt werden. Die maximal erzielte Pulsenergie der (ps) Laserpulse beträgt ca. 500 μJ . Allerdings werden gleichzeitig ca. 300 μJ an ASE erzeugt. Zurzeit verhindert die ASE eine weitere Verstärkung der (ps) Laserpulse bzw. eine Erhöhung der Pump-Pulsenergie, da die ASE als parasitärer Prozess Besetzungsinversion in der zweiten und dritten Verstärkerstufe abräumt, die dann nicht mehr zur Verstärkung der (ps) Laserstrahlung zur Verfügung steht.

Ein weiteres Problem ist die Reabsorption der (ps) Laserstrahlung in der Farbstofflösung. Die Wellenlänge der (ps) Laserstrahlung liegt auf Grund des verwendeten Lösungsmittels im spektralen Überlapp von Absorptions- und Emissionsbande des Rhodamin 6G [33]. Dadurch erfolgt eine verstärkte Reabsorption der (ps) Laserstrahlung und die maximal mögliche Pulsenergie wird reduziert. Die einzige Lösung für dieses Problem ist die Verwendung eines anderen Farbstoffs, z.B. DCM, der aber eine geringere Effizienz bezüglich der Verstärkung aufweist.

1.7.4. Geplante Weiterentwicklung des Farbstoffverstärkers

Die nächsten Entwicklungsschritte des Farbstoffverstärkers zielen auf eine weitere Leistungssteigerung sowie eine Verbesserung der Strahlqualität nach der Verstärkung ab.

Die bisherige Wellenlänge der (ps) Laserstrahlung ist nicht für Anwendungen in geplanten Experimenten geeignet. Daher sollte der Farbstoffverstärker zunächst für die Verstärkung von (ps) Laserstrahlung mit Wellenlängen von 525 nm bis 550 nm umgerüstet werden. Dies erfordert den Austausch der Strahlführungsoptiken der Pump-Laserstrahlung sowie den Austausch des Laserfarbstoffes. Bei dem benötigten Laserfarbstoff Coumarin 153 überlappen Absorptions- und Emissionsbande nicht mehr im relevanten Spektralbereich, so dass keine Reabsorption der verstärkten (ps) Laserpulse auftritt.

Zur Unterdrückung der ASE kann idealerweise vor der letzten Verstärkerstufe ein sättigbarer Absorber in Form eines Farbstoffstrahls mit Malachite Grün als Laserfarbstoff in den Verstärker eingebaut werden. Sättigbare Absorber unterdrücken ASE wesentlich effizienter als eine räumliche Filterung mittels eines Pinholes. Durch die Unterdrückung der ASE in der letzten Verstärkerstufe ist ein Anstieg der Verstärkung in dieser Stufe und somit der Pulsenergie der (ps) Laserstrahlung zu erwarten.

Zur Verbesserung des Strahlprofils der verstärkten (ps) Laserstrahlung muss das Strahlprofil der Pump-Laserstrahlung in der letzten Farbstoffzelle gereinigt werden. Dies kann durch eine räumliche Filterung der Pump-Laserstrahlung vor dem

Verstärker erfolgen. Alternativ kann mittels einer 4f-Abbildung (*relay imaging*) das Strahlprofil der Pump-Laserstrahlung direkt nach dem Verlassen des Nd:YAG-Lasers in die letzte Verstärkerstufe abgebildet werden. Die letzte Möglichkeit stellt ein Austausch des Pump-Lasers (GCR4) gegen das neuere Modell (ProLab) mit verbessertem Strahlprofil dar. Die Phasenvariation über das räumliche Strahlprofil, welche zu einem verunreinigten Strahlprofil der Signal-Strahlung des (ns)-OPO führen, sind für das optische Pumpen einer Farbstofflösung irrelevant.

Durch diese weiteren Entwicklungsschritte sollte es möglich sein, eine Pulsenergie der verstärkten (ps) Laserpulse von deutlich über einem Millijoule zu erzielen und gleichzeitig ein verhältnismäßig sauberes räumliches Strahlprofil zu erreichen.

1.8. Zusammenfassung der Laser- und Nachweissysteme

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein Lasersystem zur Erzeugung schwacher, bandbreiten-begrenzter, ultra-kurzer (ps) Laserpulse mit Wellenlängen im sichtbaren Spektralbereich von 500 nm bis 700 nm aufgebaut. Eine thermische Stabilisierung des Lasersystems mittels einer Klimazelle ermöglicht einen stabilen Langzeitbetrieb. Durch Verstärkung der (ps) Laserpulse in einem modifizierten kommerziellen Farbstoffverstärkersystem können Pulsenergien von ca. 150 μJ bei einer Wellenlänge von 540 nm generiert werden. Außerdem wurde ein optischer Aufbau zur Analyse ultra-kurzer Laserpulse realisiert, der eine simultane frequenz- und zeitaufgelöste Messung der verstärkten (ps) Laserpulse ermöglicht. Zeitgleich wurde mit der Entwicklung eines neuen Farbstoffverstärkers begonnen. Auf Grund eines verbesserten Designs der Verstärkerstufen ergibt sich ein deutlich besseres räumliches Strahlprofil der verstärkten (ps) Laserpulse im Vergleich zum kommerziellen System. Außerdem konnte die Pulsenergie auf ca. 500 μJ bei einer Wellenlänge von 576 nm gesteigert werden. Aktuell bestehen jedoch noch Probleme mit einem starken Untergrund an verstärkter Spontanemission.

In einem weiteren Schritt wurde ein neues Pump-Lasersystem an einen vorhandenen (ns)-OPO adaptiert. Dadurch konnte die Pulsenergie der erzeugten bandbreiten-begrenzten, spektral durchstimmbaren (ns) Laserpulse verdoppelt werden. Die Strahlqualität der erzeugten Laserstrahlung hat sich jedoch deutlich verschlechtert. Mittels nachfolgender Frequenzkonversionsprozesse der generierten (ns) Laserpulse kann spektral durchstimmbare (ns) gepulste Laserstrahlung im tiefen ultra-violetten Spektralbereich erzeugt werden.

Die in Kapitel 2 und 3 durchgeführten Experimente erfordern einen Vakuumaufbau, der die Erzeugung und Detektion vakuum-ultravioletter Strahlung ermöglicht. Dazu wurde eine mehrstufige Vakuumkammer aufgebaut, die durch eine fensterlose Geometrie die Erzeugung und Detektion von Strahlung mit Wellenlängen unterhalb von 110 nm erlaubt.

Eine sorgfältige Synchronisation aller Laser- und Nachweissysteme garantiert konstante experimentelle Bedingungen.

2. Kohärente Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen

Die kohärente Kontrolle der Wechselwirkung von Licht und Materie ist ein mächtiges Werkzeug der modernen, laserbasierten Optik. Durch Manipulation einzelner Parameter der Lichtfelder lässt sich die zeitliche Entwicklung der Wechselwirkung gezielt steuern. Ein spezieller Fall der kohärenten Kontrolle basiert auf der Interferenz zweier Wechselwirkungspfade, die eine relative Phasenverschiebung zueinander aufweisen. Analog zur Interferenz zweier Lichtstrahlen in einem Interferometer überlagern sich die Wechselwirkungspfade konstruktiv oder destruktiv abhängig von der relativen Phase. In Folge dieser Quanteninterferenz wird das Resultat der Wechselwirkung überhöht oder unterdrückt [1,2]. Dieser Interferenzeffekt wird im folgenden Kapitel nur noch kurz mit dem eigentlich umfassenderen Begriff der *kohärenten Kontrolle* bezeichnet.

Kohärente Kontrolle lässt sich unter anderem bei der optischen Anregung von Atomen und Molekülen [34,35] oder auch der photoinduzierten Ionisation und Dissoziation von Molekülen anwenden [36,37]. Ebenso wurde auch die Anwendung der kohärenten Kontrolle zur Manipulation von Halbleitern und Quantenpunkten demonstriert [38,39]. In dieser Arbeit werden resonant überhöhte Frequenzkonversionsprozesse zur Erzeugung von VUV-Strahlung getrieben [40,41,42]. Die wenigen bisherigen Arbeiten zur kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen basieren auf Konversionsprozessen mit niedrigen Ordnungen, d.h. bis zur Erzeugung der dritten Harmonischen, und wurden ausschließlich mit langen (ns) Laserpulsen implementiert [3,4]. In diesem Kapitel wird die Anwendung der kohärenten Kontrolle bei der Frequenzkonversion von sichtbarer Laserstrahlung in den vakuum-ultravioletten Spektralbereich beschrieben. Erstmals werden dazu Laserpulse mit einer Pulsdauer von nur ca. 1 ps verwendet. Weiterhin ist die Wellenlänge der erzeugten VUV-Strahlung mit gut 100 nm kürzer als in allen bisherigen Experimenten.

Für die Realisierung der kohärenten Kontrolle ist es notwendig VUV-Photonen mit der gleichen Frequenz ω_{VUV} zeitgleich auf zwei unterschiedlichen Konversionspfaden zu erzeugen. Der erste Konversionspfad ist ein Fünf-Photonen-Prozess, bei dem mittels Summenfrequenzmischung fünf Photonen der Frequenz ω_1 in ein VUV-Photon der Frequenz $\omega_{VUV} = 5\omega_1$ konvertiert werden. Der zweite Konversionspfad ist ebenfalls eine Summenfrequenzmischung, jedoch werden nur drei Photonen in ein VUV-Photon konvertiert. Es werden ein Photon der Frequenz ω_1 und zwei Photonen der frequenzverdoppelten Strahlung mit $\omega_2 = 2\omega_1$ konvertiert, d.h. es gilt $\omega_{VUV} = \omega_1 + 2\omega_2$. Durch Variation der relativen Phase zwischen den Laserfeldern mit den Frequenzen ω_1 und ω_2 lässt sich die Phase zwischen den beiden Konversionsprozessen und somit die absolute Ausbeute an VUV-Photonen der Frequenz ω_{VUV} modulieren.

In Abschnitt 2.1 und 2.2 werden die Grundlagen der Frequenzkonversion in isotropen Medien und der kohärenten Kontrolle eingeführt. Anschließend wird in Abschnitt 2.3 der experimentelle Aufbau vorgestellt und die experimentellen Bedingungen für die Frequenzkonversion optimiert. Im Abschnitt 2.4 folgen die Experimente zur kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen.

2.1. Frequenzkonversion in atomaren Gasen

In diesem Abschnitt wird die Propagation elektromagnetischer Felder durch ein Medium, wie z.B. atomare Gase, diskutiert. Die Felder induzieren im Medium eine Polarisation, die bei hinreichenden Intensitäten zu nichtlinearen optischen Effekten wie der Erzeugung höherer Harmonischer führt. Weiterhin wird der Einfluss atomarer Resonanzen auf die induzierte Polarisation diskutiert.

2.1.1. Die paraxiale Wellengleichung

Die Ausbreitung eines elektromagnetischen Feldes \vec{E} in einem polarisierbaren Medium wird durch die Maxwellsche Wellengleichung beschrieben [43]

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P} \quad (2.1)$$

Dabei ist \vec{P} die durch das elektromagnetische Feld induzierte Polarisation im Medium und c die Lichtgeschwindigkeit. Aus Gründen der Lesbarkeit werden die expliziten Zeit und Ortsabhängigkeiten nur an relevanten Stellen angegeben. Im Folgenden werden der Einfachheit halber die Feldstärke \vec{E} und die Polarisation \vec{P} als ebene Wellen genähert, welche sich in z -Richtung ausbreiten:

$$\vec{E}(z, t) = \frac{1}{2} \vec{E}_0(z, t) \cdot e^{-i(kz + \omega t)} + c.c. \quad (2.2)$$

$$\vec{P}(z, t) = \frac{1}{2} \vec{P}_0(z, t) \cdot e^{-i(kz + \omega t)} + c.c. \quad (2.3)$$

$\vec{E}_0(z, t)$ und $\vec{P}_0(z, t)$ sind die jeweiligen orts- und zeitabhängigen Einhüllenden. Mit der Näherung langsam veränderlicher Amplituden (slowly varying envelope approximation, kurz SVEA) von elektrischer Feldstärke und Polarisation

$$\left| ik \frac{\partial}{\partial z} \vec{E}_0 \right| \gg \left| \frac{\partial^2}{\partial z^2} \vec{E}_0 \right| \quad ; \quad \left| i\omega \frac{\partial}{\partial t} \vec{E}_0 \right| \gg \left| \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}_0 \right| \quad \text{und} \quad \left| \omega^2 \vec{P}_0 \right| \gg \left| i\omega \frac{\partial}{\partial t} \vec{P}_0 \right| \gg \left| \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}_0 \right| \quad (2.4)$$

ergibt sich die Wellengleichung in paraxialer Näherung zu

$$\left[\frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right] \vec{E}_0 = i \frac{\omega}{2\epsilon_0 c} \vec{P}_0 \quad (2.5)$$

Für Laserpulse mit einer Pulsdauer von ca. 1 ps und Frequenzen von $10^{14} - 10^{15}$ Hz, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, ist die Anwendung der SVEA noch gut gerechtfertigt. Durch Transformation der Wellengleichung in ein mitbewegtes Koordinatensystem ($t' = t - z/c$ und $z' = z$) ergibt sich die übersichtliche Darstellung

$$\frac{\partial}{\partial z} \vec{E}_0 = i \frac{\omega}{2\epsilon_0 c} \vec{P}_0 \quad (2.6)$$

Die induzierte Polarisation \vec{P}_0 wirkt demnach zurück auf das propagierende elektromagnetische Feld \vec{E}_0 . Für hinreichend hohe Intensitäten des elektromagnetischen Feldes müssen nichtlineare Terme in der Polarisation berücksichtigt werden. Die dadurch auftretenden Effekte werden im Abschnitt 2.1.2 erläutert.

2.1.2. Die nichtlineare Polarisation in isotropen Medien

Die induzierte Polarisation \vec{P} lässt sich in erster Näherung als ein Polynom in Abhängigkeit des elektromagnetischen Feldes \vec{E} schreiben:

$$\vec{P} = \chi^{(1)}\vec{E} + \chi^{(2)}\vec{E}^2 + \chi^{(3)}\vec{E}^3 + \chi^{(4)}\vec{E}^4 + \chi^{(5)}\vec{E}^5 + \dots \quad (2.7)$$

Die Koeffizienten $\chi^{(n)}$ sind die Suszeptibilitätstensoren n -ter Stufe. Die Tensoren sind frequenz- und richtungsabhängigen und im Allgemeinen komplexe Größen, deren Betrag mit steigender Ordnung rapide abfällt. Im Falle isotroper Medien sind die Suszeptibilitäten gerader Ordnung identisch Null. Veranschaulichen lässt sich dies durch eine Richtungsumkehr des elektrischen Feldes. Die Polarisation zweiter Ordnung $\vec{P}^{(2)}$ folgt dann zu

$$\vec{P}^{(2)}(-\vec{E}) = \chi^{(2)} \cdot (-\vec{E}) \cdot (-\vec{E}) = \chi^{(2)} \cdot \vec{E} \cdot \vec{E} = \vec{P}^{(2)}(\vec{E}) \quad (2.8)$$

Bei einer Richtungsumkehr des elektromagnetischen Feldes ändert sich die Orientierung der induzierten Polarisation somit nicht. Eine derartige Vorzugsorientierung ist in isotropen Medien nicht möglich, so dass $\chi^{(2)} = 0$ bzw. $\chi^{(n)} = 0$ mit geradzahligem n gelten muss. Propagiert das elektromagnetische Feld entlang einer festen Raumachse z und ist der Feldvektor linear polarisiert, so kann man weiterhin zu skalaren Größen übergehen:

$$P = \chi^{(1)}E + \chi^{(3)}E^3 + \chi^{(5)}E^5 + \dots \quad (2.9)$$

Die lineare Polarisation $P^{(1)} = \chi^{(1)}E$ ist verantwortlich für die Propagationseffekte Absorption und Dispersion. Die im Folgenden betrachteten nichtlinearen Polarisationen $P^{(3)} = \chi^{(3)}E^3$ und $P^{(5)} = \chi^{(5)}E^5$ sind unter anderem ursächlich für Frequenzkonversionsprozesse. Im Falle monochromatischer Felder $E(t) = E_0(t) \cdot \exp(-i\omega_1 t) + c.c.$ ergeben sich für die Polarisation n -ter Ordnung Terme, welche proportional zu $\exp(-i(n\omega_1)t)$ sind. Gemäß der Maxwell'schen Propagationsgleichung (2.6) erzeugen diese Terme der induzierten nichtlinearen Polarisation n -ter Ordnung ein elektromagnetisches Felds mit einer Trägerfrequenz $\omega_n = n\omega_1$. Es kommt zur Frequenzverdreifung ($n = 3$) bzw. zur Frequenzverfünffachung ($n = 5$) des einfallenden elektromagnetischen Feldes.

Ist das einfallende elektromagnetische Feld \vec{E} eine Superposition aus zwei Feldern mit unterschiedlicher Amplitude und Frequenz

$$E(t) = E_{01} \cdot e^{-i\omega_1 t} + E_{02} \cdot e^{-i\omega_2 t} + c.c. \quad (2.10)$$

so ergibt sich eine komplexere Situation. Für die Polarisation dritter Ordnung bedeutet dies, dass nicht nur Frequenzverdreifung der jeweiligen einfallenden Felder, sondern der allgemeinere Fall der Vierwellenmischung auftritt (*four-wave mixing*, FWM). Dabei entstehen elektromagnetische Felder mit Frequenzen, die sich aus der Linearkombination der Frequenzen der einfallenden Felder ergeben. Abbildung 21 zeigt schematisch alle auftretenden Konversionsprozesse, die zur Erzeugung von elektromagnetischen Feldern mit neuen Frequenzen ω_{FWM} führen.

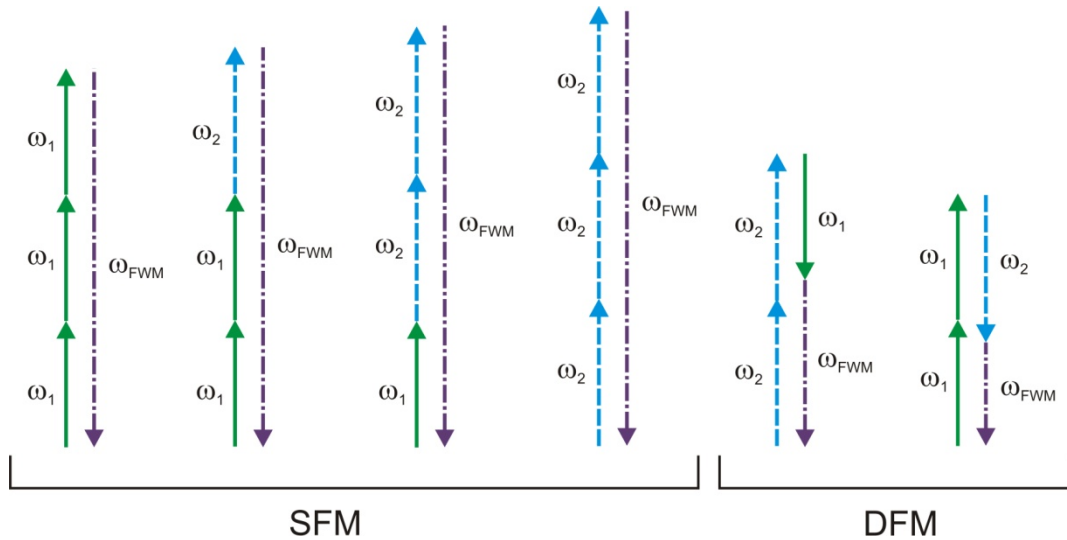


Abbildung 21: Schematische Darstellung der möglichen Konversionsprozesse dritter Ordnung im Falle bichromatischer elektromagnetischer Felder. Links: Summenfrequenzmischung (SFM), rechts: Differenzfrequenzmischung (DFM)

Welche der dargestellten Prozesse tatsächlich stattfinden, hängt stark von den experimentellen Bedingungen ab. In ausgedehnten Medien ist es im Allgemeinen notwendig außer der zeitlichen Entwicklung auch die räumliche Entwicklung der elektromagnetischen Felder und Polarisationen bei der Propagation durch das Medium zu berücksichtigen. Die unterschiedlichen Wellenvektoren der einfallenden und erzeugten Felder bedingen typischerweise ein Auseinanderlaufen der jeweiligen Phasen, wodurch die Effizienz des Konversionsprozesses dramatisch beeinflusst wird [44]. Durch geschickte Wahl der experimentellen Bedingungen kann jedoch häufig für den gewünschten Prozess eine Phasenanpassung der beteiligten Felder realisiert werden, so dass dieser Konversionsprozess mit hinreichender Effizienz stattfindet.

Ein weiterer Parameter, der die Amplitude der induzierten Polarisation und damit die absolute Konversionseffizienz deutlich beeinflusst, ist die Suszeptibilität $\chi^{(n)}$. Der Abschnitt 2.1.3 diskutiert die Eigenschaften sowie die Möglichkeit der resonanten Überhöhung der Suszeptibilität.

2.1.3. Resonante Überhöhung der nichtlinearen Polarisation

Die Amplitude der induzierten nichtlinearen Polarisation ist durch die Feldstärke des einfallenden elektromagnetischen Feldes $E(t)$ sowie durch die Suszeptibilität χ bestimmt

$$P^{(n)}(t) = \chi^{(n)} \cdot E^n(t) \quad (2.11)$$

Die Suszeptibilitäten sind durch die möglichen Übergänge und entsprechenden Übergangsmomente des Mediums sowie die Dichte und die Besetzungsverteilung innerhalb des Mediums gegeben. Unter der Annahme, dass während der Wechselwirkung kein Besetzungstransfer im Medium erfolgt, lassen sich analytische Ausdrücke für die Suszeptibilitäten in atomaren Medien herleiten [45]. Die Annahme, dass kein Besetzungstransfer im Medium auftritt, ist auch für den Fall resonanter Anregung immer dann gerechtfertigt, wenn die Pulsfläche $A = A(I_1, I_2, \omega_1, \omega_2, \tau_1, \tau_2)$ (zur Definition siehe Abschnitt 3.2) sehr klein ist, d.h. $A \ll 1$. Für die in Abschnitt 2.3 diskutierte experimentelle Umsetzung ist diese Forderung erfüllt.

Als Medium wird im Folgenden ein atomares System bestehend aus einem Grundzustand $|g\rangle$ und drei angeregten Zuständen $|e1\rangle$, $|e2\rangle$ und $|e3\rangle$ angenommen (siehe Abbildung 22). Die Besetzung des Systems soll sich vollständig im Grundzustand $|g\rangle$ befinden. Das einfallende elektromagnetische Feld sei durch Gleichung (2.10) gegeben. Für den speziellen Fall der Summenfrequenzerzeugung gemäß $\omega_{FWM} = \omega_1 + 2\omega_2$ müssen drei äquivalente Konversionspfade (a), (b) und (c) betrachtet werden (siehe Abbildung 22).

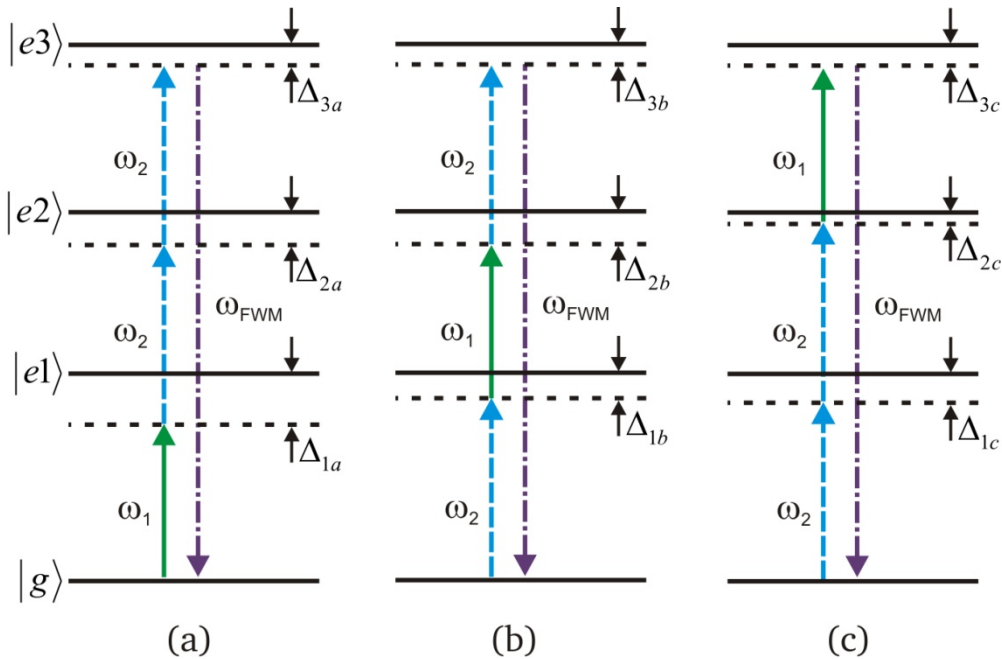


Abbildung 22: Schema zur resonanten Überhöhung von Suszeptibilitäten. (a), (b) und (c) repräsentieren drei äquivalente Konversionspfade für den speziellen Vierwellenmischprozess $\omega_{FWM} = \omega_1 + 2\omega_2$.

Die Suszeptibilität dritter Ordnung für die jeweiligen Konversionspfade lassen sich dann schreiben als

$$\chi^{(3a)}(\omega_{FWM}, \omega_1, \omega_2) \approx \frac{N}{3! \hbar^3} \frac{(\vec{\epsilon}_{FWM} \cdot \vec{\mu}_{ge3})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{ge1})(\vec{\epsilon}_2 \cdot \vec{\mu}_{e1e2})(\vec{\epsilon}_2 \cdot \vec{\mu}_{e2e3})}{(\Delta_{3a} - i\Gamma_3)(\Delta_{2a} - i\Gamma_2)(\Delta_{1a} - i\Gamma_1)} \quad (2.12)$$

$$\chi^{(3b)}(\omega_{FWM}, \omega_1, \omega_2) \approx \frac{N}{3! \hbar^3} \frac{(\vec{\epsilon}_{FWM} \cdot \vec{\mu}_{ge3})(\vec{\epsilon}_2 \cdot \vec{\mu}_{ge1})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e1e2})(\vec{\epsilon}_2 \cdot \vec{\mu}_{e2e3})}{(\Delta_{3b} - i\Gamma_3)(\Delta_{2b} - i\Gamma_2)(\Delta_{1b} - i\Gamma_1)} \quad (2.13)$$

$$\chi^{(3c)}(\omega_{FWM}, \omega_1, \omega_2) \approx \frac{N}{3! \hbar^3} \frac{(\vec{\epsilon}_{FWM} \cdot \vec{\mu}_{ge3})(\vec{\epsilon}_2 \cdot \vec{\mu}_{ge1})(\vec{\epsilon}_2 \cdot \vec{\mu}_{e1e2})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e2e3})}{(\Delta_{3c} - i\Gamma_3)(\Delta_{2c} - i\Gamma_2)(\Delta_{1c} - i\Gamma_1)} \quad (2.14)$$

Dabei ist N die Dichte des Mediums. $\vec{\epsilon}_{1,2}$ repräsentiert die Polarisationsvektoren der linear polarisierten elektromagnetischen Felder und $\vec{\epsilon}_{FWM}$ den Polarisationsvektor der induzierten Polarisation. Die Dipolübergangsmatrixelemente zwischen den einzelnen Zuständen sind durch $\vec{\mu}_{lm} = \langle l | e\vec{r} | m \rangle$ gegeben. Die Verstimmungen der Frequenzen ω_1 und ω_2 von den entsprechenden Resonanzfrequenzen sind für den Pfad (a) gegeben durch $\Delta_{3a} = \omega_{g,e3} - \omega_1 - 2\omega_2$, $\Delta_{2a} = \omega_{g,e2} - \omega_1 - \omega_2$ und $\Delta_{1a} = \omega_{g,e1} - \omega_1$. Für die Pfade (b) und (c) sind die Verstimmungen analog definiert (siehe auch Abbildung 22). Die Dämpfungsterme $i\Gamma_t$ verhindern ein Divergieren der Suszeptibilität für $\Delta_t \rightarrow 0$.

Die Suszeptibilität dritter Ordnung für den gewählten Summenfrequenzmischprozess ergibt sich dann als Summe über die drei einzelnen Suszeptibilitäten

$$\chi_{FWM}^{(3)} = \chi^{(3a)} + \chi^{(3b)} + \chi^{(3c)} \quad (2.15)$$

Für monochromatische Felder ergibt sich der Spezialfall der Frequenzverdreifung (*third harmonic generation*, THG). Die möglichen Konversionspfade sind nicht länger unterscheidbar und der Ausdruck für die Suszeptibilität vereinfacht sich zu

$$\chi^{(3)}(\omega_{THG}, \omega_1) \approx \frac{N}{\hbar^3} \frac{(\vec{\epsilon}_{THG} \cdot \vec{\mu}_{ge3})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{ge1})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e1e2})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e2e3})}{(\Delta_3 - i\Gamma_3)(\Delta_2 - i\Gamma_2)(\Delta_1 - i\Gamma_1)} \quad (2.16)$$

Die Verstimmungen sind definiert als $\Delta_t = \omega_{g,et} - t\omega_1$. Eine analoge Herleitung ergibt für den Spezialfall der Erzeugung der fünften Harmonischen (*fifth harmonic generation*, 5HG) die Suszeptibilität fünfter Ordnung zu

$$\chi^{(5)}(\omega_{5HG}, \omega_1) \approx \frac{N}{\hbar^3} \frac{(\vec{\epsilon}_{5HG} \cdot \vec{\mu}_{ge5})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{ge1})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e1e2})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e2e3})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e3e4})(\vec{\epsilon}_1 \cdot \vec{\mu}_{e4e5})}{(\Delta_5 - i\Gamma_5)(\Delta_4 - i\Gamma_4)(\Delta_3 - i\Gamma_3)(\Delta_2 - i\Gamma_2)(\Delta_1 - i\Gamma_1)} \quad (2.17)$$

Durch Abstimmen der Frequenzen der einfallenden elektromagnetischen Felder auf atomaren Resonanzen lassen sich die Suszeptibilität und damit auch die nichtlineare Polarisation resonant überhöhen. Daraus resultiert eine typischerweise um mehrere Größenordnungen höhere Effizienz des Konversionsprozesses.

2.2. Prinzip der kohärenten Kontrolle

Die Technik der kohärenten Kontrolle im Sinne dieses Kapitels beruht auf der Quanteninterferenz zweier möglicher Quantenpfade, welche ein System zeitgleich auf zwei unterschiedlichen Wegen vom gleichen Ausgangszustand in einen identischen Zielzustand überführen. Ein Beispiel ist die optische Anregung eines 2-Niveau-Systems aus dem Grundzustand in den angeregten Zustand (siehe Abbildung 23). Diese Anregung kann mittels eines Ein-Photonen-Prozesses geschehen (Pfad A) aber auch über einen Mehr-Photonen-Prozess (Pfad B), z.B. einen Fünf-Photonen-Prozess. Ebenso ist auch eine Zwei-Photonen-Anregung gegenüber einer Vier-Photonen-Anregung oder eine Drei-Photonen- gegenüber einer Fünf-Photonen-Anregung denkbar. Analog zur Intensität auf dem Schirm eines optischen Interferometers ist die Gesamtanregungswahrscheinlichkeit W_{tot} gegeben als die kohärente Überlagerung der einzelnen Anregungswahrscheinlichkeiten W_A und W_B auf dem Pfad A bzw. B. Die relative Phase der anregenden Laserfelder mit den Frequenzen ω und 5ω definiert dabei die relative Phase zwischen den Wahrscheinlichkeiten W_A und W_B . Abhängig von dieser Phase kommt es zu einer konstruktiven oder destruktiven Überlagerung der Einzelwahrscheinlichkeiten W_A und W_B und somit zu einer phasenabhängigen Modulation der Gesamtwahrscheinlichkeit W_{tot} .

Gleiches gilt auch für Frequenzkonversionsprozesse. In diesem Fall sind jedoch nicht Anregungswahrscheinlichkeiten, sondern die induzierten nichtlinearen Polarisationen relevant. Für Quanteninterferenzeffekte müssen zwei bis auf die Phase identische nichtlineare Polarisationen induziert werden.

Den ersten Konversionspfad stellt die Erzeugung der fünften Harmonischen der einfallenden Laserstrahlung dar. Das einfallende elektromagnetische Feld $E(t)$ ist dann gegeben durch das Feld $E_1(t)$ mit

$$E_1(t) = E_{01}(t) \cdot e^{-i\varphi_1(t)} + c.c. \quad (2.18)$$

Dabei ist $E_{01}(t)$ die reale, zeitabhängige Einhüllende und $\varphi_1(t) = \omega_1 t + \varphi_{01}$ die zeitabhängige Phase des Feldes.

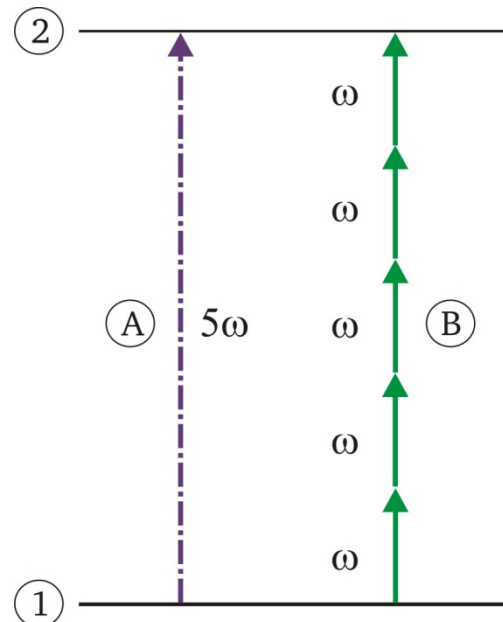


Abbildung 23: Schema zur kohärenten Kontrolle von optischen Anregungen.

Wie in Abschnitt 2.1.2 erläutert, führt die nichtlineare Polarisation fünfter Ordnung unter anderem zur Erzeugung der fünften Harmonischen des einfallenden Feldes $E_1(t)$

$$P^{(5)} = \chi^{(5)} \cdot E_1^5 \quad (2.19)$$

Einsetzen von (2.18) in (2.19) ergibt:

$$P^{(5)} = \chi^{(5)} \left[E_{01}^5 \left(e^{-i5\varphi_1} + 5e^{-i3\varphi_1} + 7e^{-i\varphi_1} \right) + c.c. \right]$$

Für die Erzeugung der fünften Harmonischen mit $\omega_{VUV} = 5\omega_1$ ist lediglich der erste Summand in der Klammer relevant

$$P_{5HG}^{(5)} = \chi^{(5)} \left(E_{01}^5 \cdot e^{-i5(\omega_1 t + \varphi_{01})} + c.c. \right) \quad (2.20)$$

Die übrigen Terme ergeben einen zusätzlichen Beitrag zu den Polarisationen erster und dritter Ordnung. Analog ergeben die Polarisationen ab der siebten Ordnung Korrekturterme zur nichtlinearen Polarisation fünfter Ordnung. Typischerweise sind die Terme aber auf Grund der schnell abfallenden Suszeptibilität höherer Ordnungen klein im Vergleich zu $P_{5HG}^{(5)}$, so dass sie im Folgenden vernachlässigt werden.

Der zweite Konversionspfad wird durch Summenfrequenzmischung eines Photons der fundamentalen Strahlung mit der Frequenz ω_1 und zweier Photonen der frequenzverdoppelten Strahlung mit der Frequenz $\omega_2 = 2\omega_1$ gebildet. Die so generierte VUV-Strahlung hat die gleiche Frequenz ω_{VUV} wie die durch Bildung der fünften Harmonischen erzeugte Strahlung:

$$\omega_{VUV} = \omega_1 + 2\omega_2 = 5\omega_1 \quad (2.21)$$

Das einfallende elektromagnetische Feld $E(t)$ ist hierbei eine Superposition der Felder $E_1(t)$ und $E_2(t)$

$$E(t) = E_1(t) + E_2(t) = E_{01}(t) \cdot e^{-i\varphi_1(t)} + E_{02}(t) \cdot e^{-i\varphi_2(t)} + c.c. \quad (2.22)$$

Dabei ist $E_1(t)$ gegeben durch Gleichung (2.18). $E_2(t)$ ist analog definiert als $E_2(t) = E_{02}(t) \exp(-i\varphi_2(t)) + c.c.$ mit $\varphi_2(t) = \omega_2 t + \varphi_{02}$. Bei der beschriebenen Summenfrequenzmischung handelt es sich um einen Drei-Photonen-Prozess. Ursächlich für einen solchen Vierwellenmischprozess ist in erster Näherung die nichtlineare Polarisation dritter Ordnung

$$P^{(3)} = \chi^{(3)} \cdot E^3 \quad (2.23)$$

Einsetzen von (2.22) in (2.23) ergibt sechs Summanden der Polarisation dritter Ordnung. Jeder dieser Summanden repräsentiert einen der in Abbildung 21 ge-

zeigten Mischprozesse. Für den oben beschriebenen Vierwellenmischprozess $\omega_{UV} = \omega_1 + 2\omega_2$ lautet der entsprechende Term

$$P_{FWM}^{(3)} = \chi_{FWM}^{(3)} \cdot \left[E_{01} E_{02}^2 \cdot e^{-i[(\omega_1 + 2\omega_2)t + \varphi_{01} + 2\varphi_{02}]} + c.c. \right] \quad (2.24)$$

Die Phasen φ_{01} und φ_{02} der elektromagnetischen Felder sind frei wählbar. Im Folgenden wird $\varphi_{02} = 0$ gewählt, wodurch $\varphi_{01} = \varphi_R$ die relative Phase φ_R zwischen den Feldern E_1 und E_2 repräsentiert. Gleichung (2.20) und (2.24) lauten dann

$$P_{SHG}^{(5)} = \chi^{(5)} \left(E_{01}^5 \cdot e^{-i5(\omega_1 t + \varphi_R)} + c.c. \right) \quad (2.25)$$

$$P_{FWM}^{(3)} = \chi_{FWM}^{(3)} \cdot \left[E_{01} E_{02}^2 \cdot e^{-i[(\omega_1 + 2\omega_2)t + \varphi_R]} + c.c. \right] \quad (2.26)$$

Die induzierte Gesamtpolarisation P_{ges} ergibt sich zu

$$P_{ges} = P_{FWM}^{(3)} + P_{SHG}^{(5)} = \tilde{P}_{FWM}^{(3)} \cdot e^{-i[(\omega_1 + 2\omega_2)t + \varphi_R]} + \tilde{P}_{SHG}^{(5)} \cdot e^{-i5(\omega_1 t + \varphi_R)} \quad (2.27)$$

Dabei werden die Abkürzungen $\tilde{P}_{FWM}^{(3)} = \chi_{FWM}^{(3)} \cdot E_{01} E_{02}^2$ und $\tilde{P}_{SHG}^{(5)} = \chi^{(5)} \cdot E_{01}^5$ für die Amplituden der Polarisation dritter und fünfter Ordnung verwendet. Weiterhin wird zur besseren Lesbarkeit der komplex konjugierte Anteil nicht explizit aufgeführt.

Die induzierte Polarisation führt zur Erzeugung eines elektromagnetischen Feldes gemäß der Maxwell'schen Propagationsgleichung. Die Intensität des erzeugten Feldes $I_{UV}(t) \propto |E(t)|^2$ ist demnach proportional zum Betragsquadrat der Polarisation:

$$\frac{\partial I_{UV}}{\partial z} \propto |P_{ges}|^2 = |P_{FWM}^{(3)} + P_{SHG}^{(5)}|^2 \quad (2.28)$$

Einsetzen von Gleichung (2.27) in (2.28) unter Beachtung von $\omega_2 = 2\omega_1$ ergibt

$$\frac{\partial I_{UV}}{\partial z} \propto |\tilde{P}_{FWM}^{(3)}|^2 + |\tilde{P}_{SHG}^{(5)}|^2 + \left(\tilde{P}_{FWM}^{(3)} \cdot \tilde{P}_{SHG}^{(5)*} \cdot e^{i4\varphi_R} + c.c. \right) \quad (2.29)$$

Betrachtet man nur den im Experiment mittels eines Photodetektors messbaren Realteil der Intensität, so ergibt sich

$$\text{Re}\{I_{UV}\} \propto \int_L \left[|\tilde{P}_{FWM}^{(3)}|^2 + |\tilde{P}_{SHG}^{(5)}|^2 + 2 \text{Re}\{\tilde{P}_{FWM}^{(3)} \cdot \tilde{P}_{SHG}^{(5)*}\} \cdot \cos(4\varphi_R) \right] dz \quad (2.30)$$

mit der Propagationslänge im Medium L . Gleichung (2.30) ist formal identisch mit dem bekannten Ergebnis für die kohärente Überlagerung zweier Lichtbündel I_A und I_B mit einer relativen Phasenverschiebung δ

$$I_{A+B} = I_A + I_B + 2\sqrt{I_A I_B} \cdot \cos \delta \quad (2.31)$$

Analog zu den Interferenzphänomenen von Licht interferieren bei der Frequenzkonversion die beiden induzierten Polarisationen $P_{\text{FWM}}^{(3)}$ und $P_{\text{5HG}}^{(5)}$ miteinander. Als Folge dessen ergibt sich eine Modulation der Intensität der erzeugten Strahlung in Abhängigkeit der relativen Phase φ_R der einfallenden elektromagnetischen Felder.

2.3. Experimentelle Realisierung

Für die experimentelle Umsetzung der kohärenten Kontrolle von resonant überhöhten Frequenzkonversionsprozessen wurde Xenon als Medium gewählt. Der Vorteil von Edelgasen im Allgemeinen liegt in deren relativ hohem Ionisationspotential von mehr als 10 eV. Dadurch können Edelgasatome erst durch Strahlung im tiefen VUV direkt ionisiert werden. Das Ionisationspotential von Xenon beträgt 12.13 eV, was einer Wellenlänge von 102.3 nm entspricht [46]. Erst für kürzere Wellenlängen kommt es zu direkter Photoionisation aus dem Grundzustand. Weiterhin treten keine unerwünschten Nebeneffekte wie z.B. Photodissoziation auf, wie es bei Molekülen typischerweise der Fall ist. Der wesentliche Vorteil von Xenon gegenüber anderen Edelgasen im Bezug auf Frequenzkonversion ist die vergleichbar große Suszeptibilität [47].

2.3.1. Kopplungsschema

Abbildung 24 zeigt einen Ausschnitt aus dem Termschema des Valenzelektrons im Xenon-Atom [46]. Zur resonanten Überhöhung der Frequenzkonversionsprozesse wird die einfallende Laserstrahlung Fünf- bzw. Drei-Photonen-resonant zu atomaren Übergängen mit Übergangswellenlängen im Bereich von 105.7 nm bis 109.2 nm abgestimmt. In diesem Bereich liegen fünf spektroskopisch beobachtete Ein-Photonen-Übergänge zwischen dem Grundzustand $5p^6 \ ^1S_0$ und den angeregten Zuständen $7d \ ^2[1/2]_1$, $7d \ ^2[3/2]_1$, $9s \ ^2[3/2]_1$, $5d \ ^2[3/2]_1$ und $8d \ ^2[1/2]_1$ (fett dargestellt in Abbildung 24). Die Zustände sind in der Racah-Kopplung $nl \ ^{2s+1}[K]_J$ angegeben [48], in der der Drehimpuls \vec{l} des Valenzelektrons mit dem Gesamtdrehimpuls \vec{j}_c des verbleibenden Atomrumpfes zu $\vec{K} = \vec{l} + \vec{j}_c$ koppelt. Der Gesamtdrehimpuls $\vec{J} = \vec{K} + \vec{s}$ ergibt sich aus der Kopplung des Spins \vec{s} des Valenzelektrons mit dem Drehimpuls \vec{K} .

Auf Grund der Vielzahl der atomaren Zustände und daraus resultierenden Ein-Photonen-Kopplungen ist es nicht ohne weiteres möglich, effektive Mehr-Photonen-Übergangsmomente für die genannten Übergänge zu berechnen. Daher kann auch keine Abschätzung der resonant überhöhten Suszeptibilität für die fünf Übergänge erfolgen. Im Abschnitt 2.4.1 wird jedoch mittels Spektroskopie der Erzeugung der fünften Harmonischen die relative Überhöhung der Frequenzkonversionsprozesse durch einzelne atomare Übergänge bestimmt.

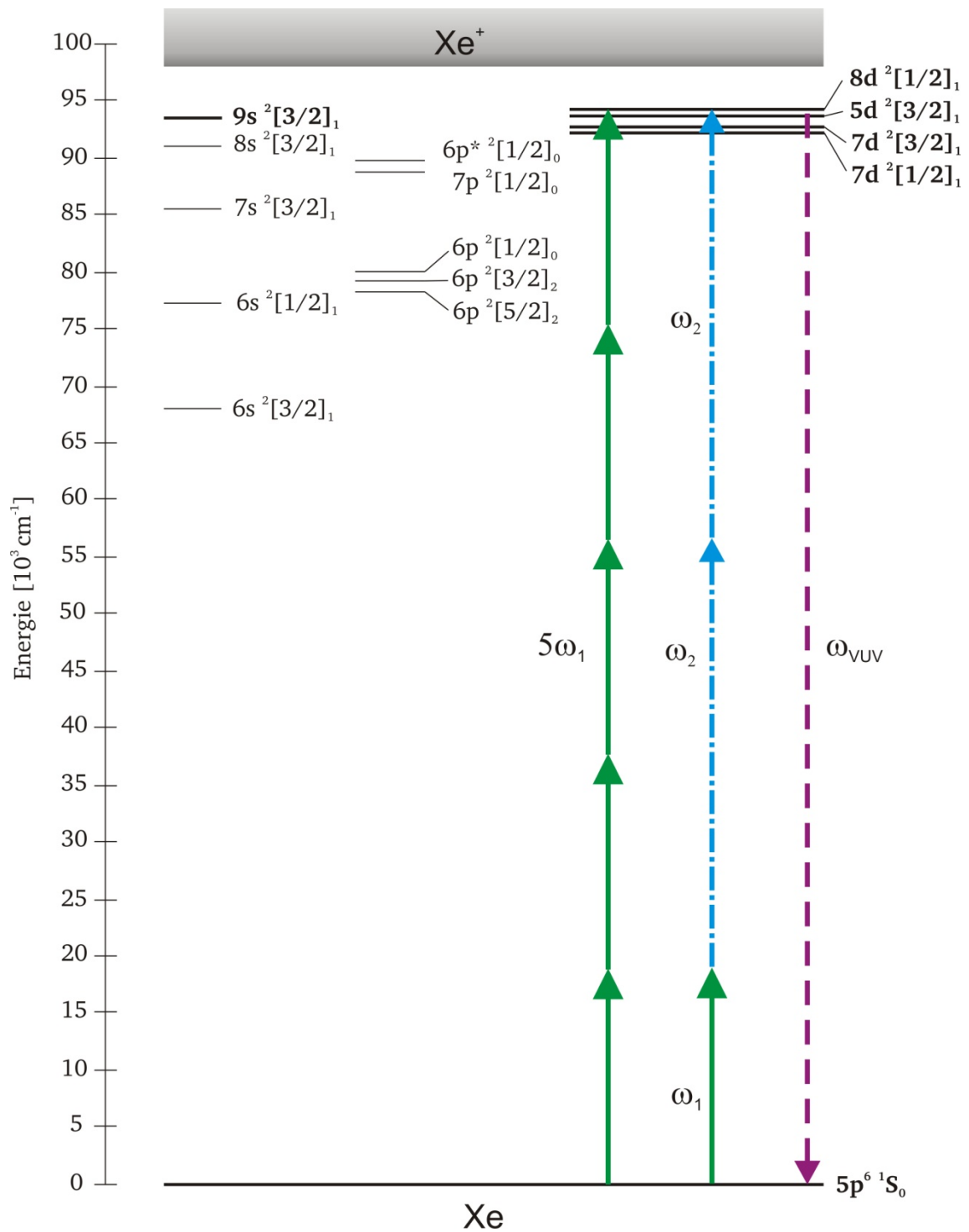


Abbildung 24: Ausschnitt aus dem Termschema des Xenon-Atoms. Die spektroskopisch beobachtbaren Zustände (siehe Text) sind fett dargestellt. Die Pfeile repräsentieren die experimentell umgesetzten Mehr-Photonen-Kopplungen.

2.3.2. Experimenteller Aufbau

Für die Experimente zur kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen wird das in Abschnitt 1.1 und 1.2 erläuterte (ps) Lasersystem benötigt. Erzeugung und Nachweis der VUV-Strahlung erfolgt in dem in Abschnitt 1.6 eingeführten Vakuumsystem. Abbildung 25 zeigt eine schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus.

Die verstärkten (ps) Laserpulse mit einer Pulsenergie $E_1 \approx 100 \mu\text{J}$ und Wellenlängen λ_1 im Bereich von 528.5 nm bis 546.0 nm werden zunächst mittels einer Sammellinse (Brennweite 500 mm) in einen 1.5 mm langen BBO-Kristall fokussiert, wo ein Teil der Strahlung frequenzverdoppelt wird. Die so generierte Strahlung mit Wellenlängen λ_2 von 264 nm bis 273 nm ist orthogonal zur einfallenden Laserstrahlung polarisiert. Die erzielbare Pulsenergie der frequenzverdoppelten Strahlung beträgt bis zu $E_2^{max} \approx 30 \mu\text{J}$. Für die durchgeführten Experimente werden variable Pulsenergien von lediglich $1 - 10 \mu\text{J}$ benötigt. Diese werden durch leichtes Verdrehen des BBO-Kristalls eingestellt. Die aus der Drehung resultierende Phasenfehlانpassung des Konversionsprozesses führt zu einer schlechteren Konversionseffizienz und somit zu geringeren Pulsenergien der frequenzverdoppelten Strahlung. Der ebenfalls aus der Drehung resultierende geometrische Strahlversatz ist auf Grund der geringen Länge des Kristalls vernachlässigbar.

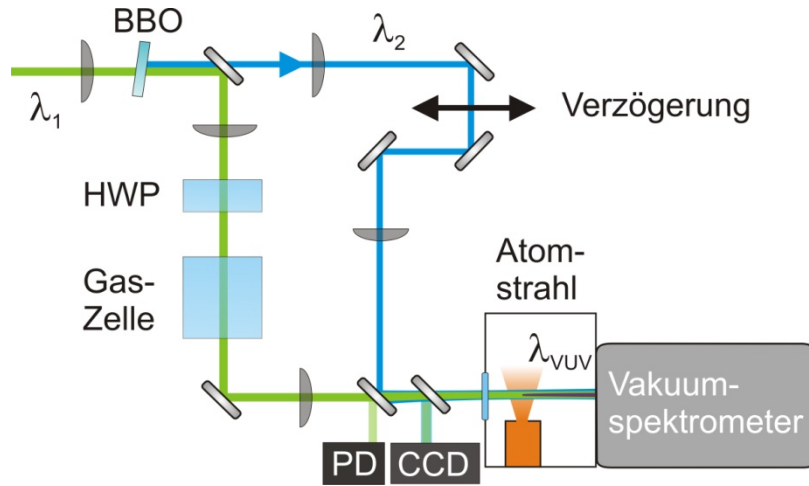


Abbildung 25: Schematische Darstellungen des Aufbaus für die Experimente zur kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen.

Das in Abschnitt 2.1.3 beschriebene Vierwellenmischschema $\omega_{VUV} = \omega_1 + 2\omega_2$ ermöglicht die Bestimmung der Pulsdauer τ_2 der frequenzverdoppelten Laserpulse durch Kreuz-Korrelationsmessungen mit dem fundamentalen Laserpuls. Dazu wird über eine optische Verzögerungstrecke die zeitliche Verzögerung der beiden Laserpulse mit Frequenzen $\omega_1 = c/\lambda_1$ und $\omega_2 = c/\lambda_2$ variiert. Mit der in Abschnitt 1.3 bestimmten Pulsdauer $\tau_1 = 1.1 \text{ ps}$ des fundamentalen Laserpulses lässt sich unter der Annahme hyperbolisch-sekants förmiger Intensitätseinhüllender die Pulsdauer des frequenzverdoppelten Laserpulses zu $\tau_2 \approx 1.0 \pm 0.3 \text{ ps}$ abschätzen.

Mittels eines dichroitischen Spiegels werden beide Laserstrahlen räumlich getrennt und über separate Linsen wieder kollimiert. Der frequenzverdoppelte Laserpuls propagiert entlang einer optischen Verzögerungstrecke zur zeitlichen Synchronisation mit dem fundamentalen Laserpuls. Durch eine achromatische $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte (HWP) wird die Polarisationsrichtung der fundamentalen Laserstrahlung an die der frequenzverdoppelten Laserstrahlung angepasst. Eine 10 cm lange Gaszelle, gefüllt mit Argon bei variablem Gasdruck, im Strahlengang der fundamentalen Laserstrahlung dient zur gezielten Manipulation der relativen Phase zwischen den beiden Laserpulsen (siehe unten). Beide Strahlen werden getrennt in das Wechselwirkungsgebiet in der Vakuumkammer fokussiert. Mittels eines weiteren dichroitischen Spiegels unmittelbar vor der Vakuumkammer werden die beiden Strahlen rekombiniert und im Wechselwirkungsgebiet räumlich überlagert. Die frequenzverdoppelte Strahlung weist dabei das größere räumliche Strahlprofil mit einem Durchmesser von ca. 50 μm (FWHM der Intensität) auf und überdeckt vollständig das Strahlprofil der fundamentalen Laserstrahlung mit einem Durchmesser von 14 μm (FWHM der Intensität).

Hinter dem Wechselwirkungsgebiet propagieren sämtliche Strahlungen in das Vakuumspektrometer (siehe Abschnitt 1.6). Als Detektor für die erzeugte VUV-Strahlung mit Wellenlängen λ_{VUV} im Bereich von 105.7 nm bis 109.2 nm dient in allen Experimenten zur kohärenten Kontrolle der Elektronenvervielfacher.

Simultan zum erzeugten VUV-Signal werden auch Pulsenergie und Strahllage der einfallenden Laserstrahlen detektiert. Zur Messung der Pulsenergie wird ein Reflex der fundamentalen Laserstrahlung am zweiten dichroitischen Spiegel auf eine integrierende Photodiode (PDI-400, Becker & Hickl) umgelenkt. Das Photodiodensignal ist proportional zur Pulsenergie des detektierten Laserpulses und wird von einem Integrator verarbeitet sowie mittels des Mess-PC erfasst. Zwischen dem dichroitischen Spiegel und dem Eintrittsfenster der Vakuumkammer befindet sich außerdem noch eine dünne Quarzplatte. Der Oberflächenreflex dieser Quarzplatte trifft auf eine CCD-Kamera, welche während des Experimentes eine kontinuierliche Überwachung der Strahllage beider Laserstrahlen ermöglicht.

2.4. Ergebnisse und Diskussion

Das Prinzip der kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen wurde bereits in Abschnitt 2.2 eingeführt. Experimentell ist es jedoch im Allgemeinen nicht ohne weiteres möglich, zwei beliebige Konversionsprozesse zur Erzeugung von Strahlung mit identischer Frequenz zeitgleich zu realisieren. Die Propagationseigenschaften der verschiedenen beteiligten Strahlungen im Medium können stark variieren, wodurch sich unabhängige Phasen Anpassungen ergeben. Dies wiederum kann die Effizienz der verschiedenen, aber simultan ablaufenden Konversionsprozesse deutlich beeinflussen. Im ungünstigsten Fall lassen sich die beiden Prozesse nicht gleichzeitig implementieren.

Im Experiment wird zunächst die Erzeugung der fünften Harmonischen zur Realisierung des ersten Konversionspfades untersucht. Mittels Spektroskopie werden

geeignete atomare Übergänge zur resonanten Überhöhung des Konversionsprozesses identifiziert. Messungen zur Abhängigkeit der Intensität der erzeugten VUV-Strahlung von Intensität und Strahlage der fundamentalen Laserstrahlung sowie des Stagnationsdruck des Atomstrahls ermöglichen die Bestimmung geeigneter experimenteller Bedingungen für die kohärente Kontrolle. Daran anschließend wird die simultane Erzeugung eines Vierwellenmischsignals als zweitem Konversionspfad untersucht. Im letzten Teil folgen die Ergebnisse zur kohärenten Kontrolle der Frequenzkonversionsprozesse.

2.4.1. Erzeugung der fünften Harmonischen

In Abschnitt 2.2 wurde gezeigt, dass für die Realisierung der kohärenten Kontrolle zwei simultane, aber unterschiedliche Konversionspfade notwendig sind. In diesem Abschnitt wird die Erzeugung der fünften Harmonischen als Realisierung des ersten Konversionspfades untersucht. Die frequenzverdoppelte Strahlung mit der Wellenlänge λ_2 wird dazu im Experiment nicht benötigt. Der für die Frequenzverdopplung verwendete BBO-Kristall (siehe Abbildung 25) wird aus dem Strahlengang entfernt, wodurch eine maximale Pulsenergie $E_1^{max} \approx 70 \mu\text{J}$ der fundamentalen Laserpulse mit der Wellenlänge λ_1 im Wechselwirkungsgebiet erreicht wird.

Spektrale Abhängigkeit der Konversionseffizienz

Wie in Abschnitt 2.1.3 gezeigt wurde, lässt sich die Effizienz von Frequenzkonversionsprozessen steigern, indem die einfallende Laserstrahlung resonant auf einen atomaren Übergang abgestimmt wird. Die quantitative Effizienzsteigerung variiert dabei stark zwischen verschiedenen Übergängen und lässt sich in realen Systemen theoretisch nahezu nicht voraussagen. Daher ist es notwendig mittels Spektroskopie Übergänge zu identifizieren, welche eine für die geplanten Experimente hinreichende Überhöhung des Frequenzkonversionsprozesses ermöglichen.

In dem durchgeführten Experiment zur Erzeugung der fünften Harmonischen wird die fundamentale Laserstrahlung im Wellenlängenbereich von 528.5 nm bis 546.0 nm variiert. Die Intensität der Strahlung im Wechselwirkungsgebiet beträgt $I_1 \approx 1 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$. In Abbildung 26 ist die Intensität der erzeugten VUV-Strahlung gegenüber der Wellenlänge λ_1 der fundamentalen Laserstrahlung aufgetragen. Man erkennt deutlich drei separate Intensitätsmaxima bei den Wellenlängen 530.5 nm, 539.0 nm und 542.7 nm. Dies entspricht Wellenlängen im VUV von 106.1 nm, 107.8 nm und 108.5 nm. Durch Vergleich mit spektroskopischen Daten [46] können die gemessenen Intensitätsmaxima einer Fünf-Photonen-resonanten Überhöhung der Konversionseffizienz durch die atomaren Übergänge vom Grundzustand $5p^6 \text{ } ^1\text{S}_0$ in die angeregten Zuständen $7d \text{ } ^2[1/2]_1$, $7d \text{ } ^2[3/2]_1$ und $8d \text{ } ^2[1/2]_1$ im Xenon-Atom zugeordnet werden. Die diesen Resonanzen entsprechenden Übergangswellenlängen sind durch Pfeile in Abbildung 26 markiert. Im untersuchten Spektralbereich liegen noch zwei weitere atomare Übergänge vom Grundzustand zu den angeregten Zuständen $9s \text{ } ^2[3/2]_1$ und $5d$

$^2[3/2]_1$, für die keine hinreichende Überhöhung der Konversionseffizienz beobachtet werden kann.

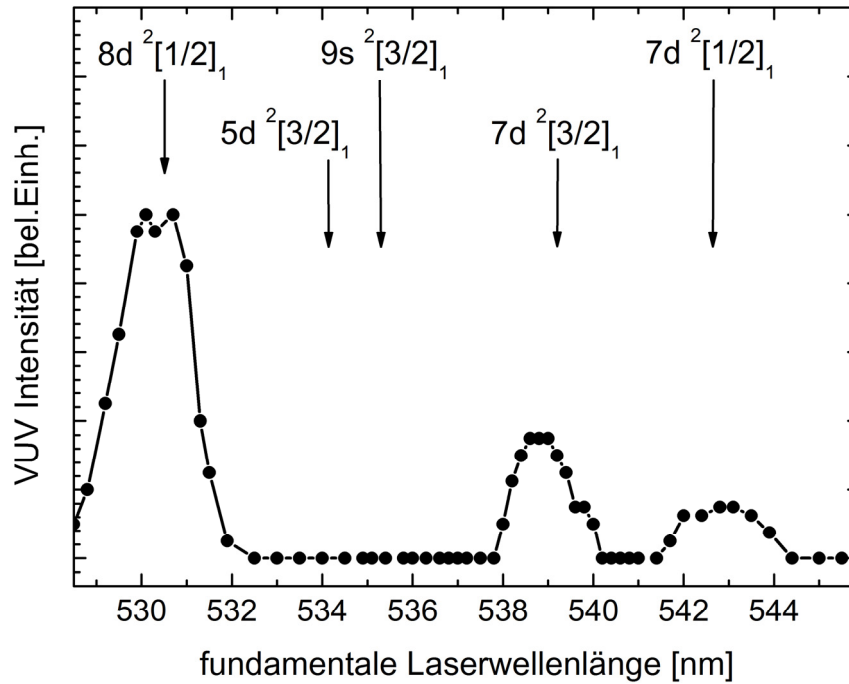


Abbildung 26: Relative Intensität der erzeugten VUV-Strahlung in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ_1 der fundamentalen Laserstrahlung.

Der gute spektrale Überlapp der gemessenen Intensitätsmaxima mit den atomaren Übergängen sowie die nahezu symmetrische Form der Maxima sind starke Indizien dafür, dass keine signifikanten Phasenanpassungseffekte zwischen fundamentaler und erzeugter Laserstrahlung für die gegebenen experimentellen Bedingungen auftreten. Auf Grund der Dispersion des nichtlinearen Mediums propagieren fundamentale und erzeugte Strahlung mit unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten im Medium. Dadurch kommt es zu einer Phasenverschiebung zwischen den beiden Strahlungen. Wird diese Phasenfehlانpassung während der Propagation im Medium zu groß, wird die Konversionseffizienz deutlich reduziert. Diese Problematik lässt sich lösen, indem zum Beispiel geeignete doppelbrechende Medien verwendet werden, die eine Phasenanpassung von fundamentaler und erzeugter Laserstrahlung ermöglichen. Bei isotropen Medien wie Edelgasen ist dies nicht möglich. Die Phasenfehlانpassung in ausgedehnten atomaren Medien lässt sich jedoch reduzieren, indem die Laserstrahlung leicht von der Resonanz hin zu kürzeren Wellenlängen verstimmt wird [40,49,50]. In dieser spektralen Region weisen atomare Medien typischerweise eine negative Dispersion auf, d.h. Strahlung mit langen Wellenlängen propagiert langsamer durch das Medium als Strahlung mit kurzen Wellenlängen. Auf Grund der längeren Verweildauer der einfallenden Strahlung mit langer Wellenlänge im Medium lässt sich auf diese Weise die Phasenfehlانpassung teilweise kompensieren und die Konversionseffizienz im Vergleich zu resonanter Strahlung steigern. Für signifikante Phasenanpassungseffekte ist folglich eine Verschiebung der maximalen

Konversionseffizienz hin zu kürzeren Wellenlängen zu erwarten. Dies kann im Experiment nicht beobachtet werden. Der Grund dafür liegt in der Länge L des Mediums. Ist das Medium kürzer als die optische Kohärenzlänge L_c des Konversionsprozesses, so können Phasenfehlانpassungen vernachlässigt werden.

Die optische Kohärenzlänge des Konversionsprozesses ist definiert als die Propagationslänge, nach der eine Phasenverschiebung zwischen fundamentaler und erzeugter Strahlung von 2π vorliegt. In den durchgeführten Experimenten beträgt die Phasenfehlانpassung pro Atom $\Delta k/N \approx 10^{-16} \text{ cm}^2$ [40] mit der absoluten Phasenfehlانpassung Δk und der atomaren Dichte N . Für die vorliegende Geometrie beträgt die Dichte der Xenon-Atome unter Annahme einer homogenen Dichteverteilung $N \approx 5 \cdot 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ [51]. Aus diesen Werten errechnet sich eine optische Kohärenzlänge $L_c = 2\pi/\Delta k \approx 1 \text{ cm}$. Die Breite des Atomstrahls im Wechselwirkungsgebiet beträgt hingegen nur $L \approx 1 \text{ mm}$. Da die Wechselwirkungslänge kleiner als die optische Kohärenzlänge des Frequenzkonversionsprozesses ist, sind keine Phasen Anpassungseffekte zu erwarten und die maximale Frequenzkonversion erfolgt wie beobachtet auf einer atomaren Resonanz. Diese Tatsache wird auch durch die im Folgenden dargestellten Messungen belegt.

Intensitätsabhängigkeit der Erzeugung der fünften Harmonischen

In diesem Abschnitt wird die erzeugte Intensität der VUV-Strahlung in Abhängigkeit von der Intensität der fundamentalen Laserstrahlung untersucht. Für das Experiment wird die fundamentale Laserstrahlung resonant mit dem atomaren Übergang zwischen dem Grundzustand $5p^6 \text{ } ^1\text{S}_0$ und dem angeregten Zustand $8d^2[1/2]_1$ abgestimmt, da dieser Übergang die effizienteste Frequenzkonversion ermöglicht (siehe Abbildung 26). Die Variation der Intensität der fundamentalen Laserstrahlung erfolgt durch ein Abschwächen des (ns) Pump-Pulses vor dem Farbstoffverstärker. Auf diese Weise kann die Pulsenergie des (ps) Laserpulses variiert werden ohne die anderen Pulsparameter wie Strahlprofil, zeitliche Länge und Polarisation zu verändern. Das Ergebnis der Messung ist in Abbildung 27 dargestellt. Auf der y-Achse ist die nicht kalibrierte Intensität der erzeugten VUV-Strahlung gegenüber der Intensität der fundamentalen Strahlung auf der x-Achse in doppelt-logarithmischer Darstellung aufgetragen.

Die schwarzen Dreiecke repräsentieren Einzelschussdaten, die rote Linie zeigt einen gleitenden Durchschnitt der Einzelschussdaten. Der zu beobachtende Intensitätsverlauf entspricht nicht der aus Gleichung (2.19) zu erwartenden einfachen I_1^5 -Abhängigkeit, sondern weist bei Laserintensitäten von $1.5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ und $2.5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ eine deutliche Änderung der Kurvensteigung auf. Dieses Verhalten wurde bereits früher beobachtet und lässt sich auf mikroskopische Effekte im einzelnen Xenon-Atom zurückführen [52]. Gleichung (2.19) resultiert aus einem einfachen Modell, in dem die Suszeptibilität als konstant während der Wechselwirkung angenommen wird. Auf Grund der hohen Intensitäten sowie durch die resonante Überhöhung der Frequenzkonversion kommt es im Medium während der Wechselwirkung zu dynamischen Effekten, wie z.B. Starkverschiebungen, welche direkten Einfluss auf die Suszeptibilität haben. Für diesen Fall existiert keine analytische Lösung zur Beschreibung komplexer Mehr-Elektronen-

Systeme wie dem Xenon-Atom. Für die Experimente zur kohärenten Kontrolle ist diese Tatsache von untergeordneter Relevanz. Für eine gegebene Intensität der fundamentalen Laserstrahlung ergibt sich eine bestimmte Intensität der Strahlung im VUV. Durch die kohärente Kontrolle kann diese Intensität der VUV-Strahlung, unabhängig vom absoluten Wert, auf Grund der in Abschnitt 2.2 erläuterten Quanteninterferenzeffekte moduliert werden.

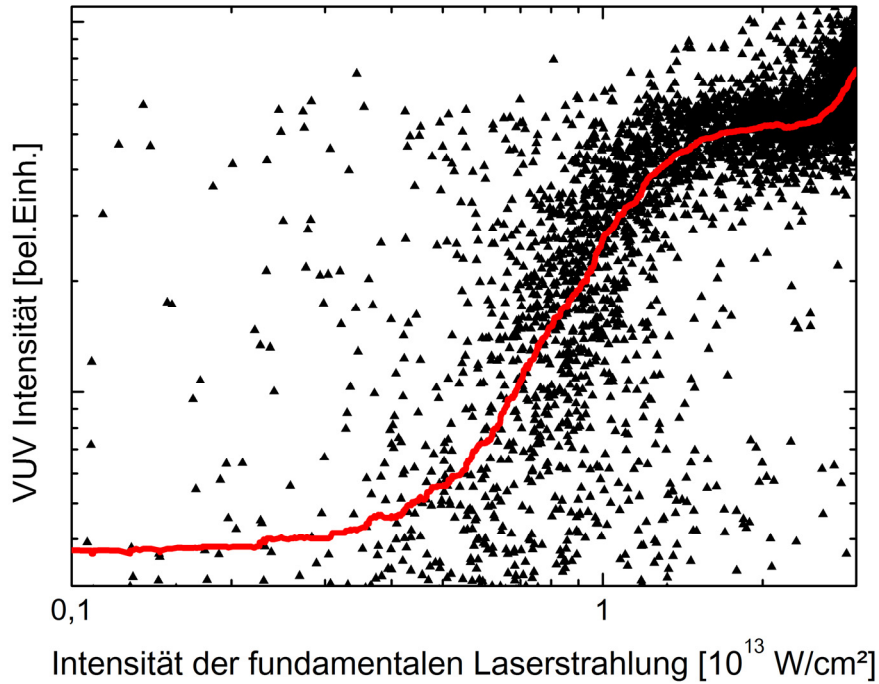


Abbildung 27: Relative Intensität der erzeugten VUV-Strahlung in Abhängigkeit von der Intensität I_1 der fundamentalen Laserstrahlung. Schwarze Dreiecke: Einzelschussdaten, rote Linie: gleitender Durchschnitt (200 Punkte).

Um auszuschließen, dass es sich bei den in Abbildung 27 zu beobachtenden Strukturen um Sättigungseffekte z.B. in der Ionisation handelt, wird zusätzlich noch das simultan erzeugte, nicht-resonante, Signal der frequenzverdreifachten Strahlung bei einer Wellenlänge von 177 nm aufgenommen, siehe Abbildung 28. Die schwarzen Dreiecke repräsentieren Einzelschussdaten und die rote Linie zeigt einen gleitenden Durchschnitt der Einzelschussdaten. Die grüne Kurve ist das Ergebnis einer Potenzfunktion mit der Potenz 2.3. Die Abweichung von der theoretisch zu erwartende I_1^3 -Abhängigkeit der erzeugten VUV-Intensität von der fundamentalen Laserintensität I_1 lässt sich auf Mittelungseffekte über das räumliche Strahlprofil sowie auf den störenden Einfluss der resonant-überhöhten 5+1-Photonen-Ionisation erklären.

Anhand der konstanten Abhängigkeit der Intensität der frequenzverdreifachten Strahlung von der Intensität der fundamentalen Laserstrahlung lässt sich schlussfolgern, dass die simultanen Frequenzkonversionsprozesse zur Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen bei den vorliegenden Intensitäten noch nicht wesentlich von Ionisationseffekten beeinflusst werden. Die Strukturen in Abbildung 26 sind daher nicht auf einsetzende Sättigung der Ionisation oder

ähnliches zurückzuführen sondern auf nicht näher bekannte Effekte im Xenon-Atom auf Grund der hohen Strahlungsintensitäten und der resonanten Kopplung.

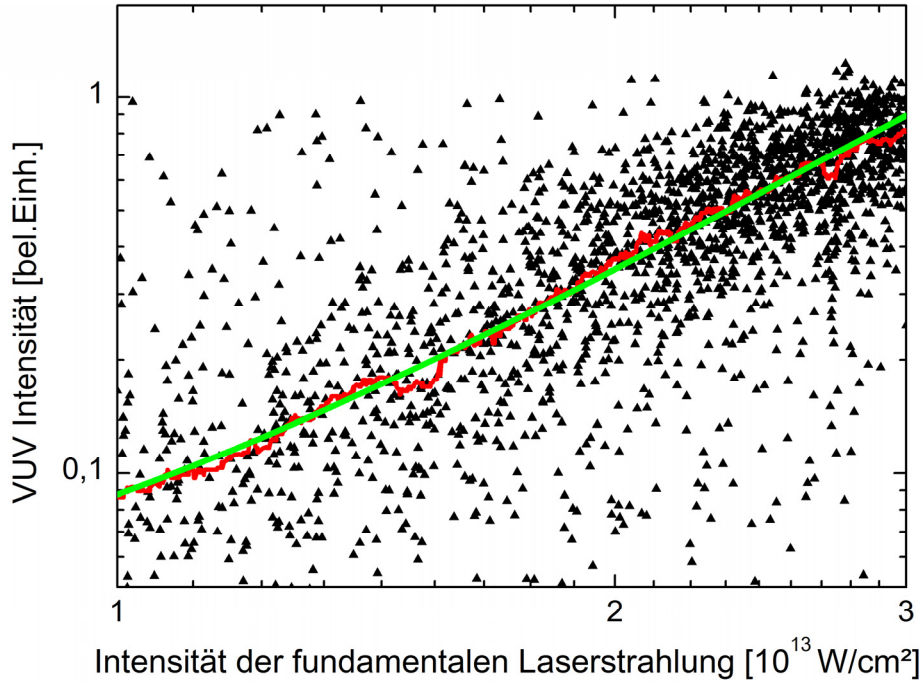


Abbildung 28: Relative Intensität der frequenzverdreifachten Strahlung in Abhängigkeit von der Intensität der fundamentalen Laserstrahlung. Schwarze Dreiecke: Einzelschussdaten, rote Linie: gleitender Durchschnitt, grüne Linie: Potenzfunktion mit Steigung 2.3.

Einfluss der Fokussierung auf die Erzeugung der fünften Harmonischen

Aus dem vorigen Teilabschnitt lässt sich erkennen, dass erst ab einer Intensität von 10^{13} W/cm^2 der fundamentalen Laserstrahlung eine zur Detektion ausreichende Anzahl an VUV-Photonen erzeugt wird. Um diese Intensitäten zu erreichen, wird die fundamentale Laserstrahlung in das Wechselwirkungsgebiet fokussiert (siehe Abschnitt 2.3.2). Aus dem im Wechselwirkungsgebiet gemessenen Strahldurchmesser von $14 \mu\text{m}$ (FWHM der Intensität) ergibt sich ein konfokaler Parameter der fundamentalen Laserstrahlung von $b_1 \approx 0.2 \text{ mm}$ (siehe dazu auch Abschnitt 2.4.3). Auf dieser Länge variiert die Intensität der fundamentalen Laserstrahlung um weniger als einen Faktor 2. Der konfokale Parameter ist wesentlich kleiner als die Wechselwirkungslänge $L \approx 1 \text{ mm}$. Dennoch beeinflusst die Lage der Fokusebene entlang der Propagationsrichtung wesentlich die Konversionseffizienz. In Abbildung 29 ist die relative Intensität der erzeugten Strahlung im VUV gegenüber der Fokusposition in Propagationsrichtung aufgetragen. Positive Werte der Fokusposition entsprechen einer Verschiebung in Propagationsrichtung, negative Werte einer Verschiebung entgegen der Propagationsrichtung. Man erkennt eine leicht asymmetrische Glockenkurve mit einem klar ausgeprägten Maximum. Diese Kurvenform ist typisch für Frequenzkonversionsprozesse in absorbierenden Medien unter Vernachlässigung von Phasenanpassungseffekten [49] und lässt sich für eine homogene Dichteverteilung des Mediums wie folgt

verstehen: Die Zahl der erzeugten VUV-Photonen ist gemäß der Maxwellschen Wellengleichung proportional zum Quadrat der Dichte N der Xenon-Atome (siehe Abschnitt 2.1)

$$\frac{\partial I_{\text{VUV}}}{\partial z} \propto P^{(n)} \propto \chi^{(n)} \propto N^2 \quad (2.32)$$

Bei konstanter Dichte N wächst die Zahl der erzeugten VUV-Photonen linear mit der Länge des Mediums. Auf Grund des gewählten Konversionsschemas können die erzeugten VUV-Photonen von den Xenon-Atomen auch wieder reabsorbiert werden. Die Absorptionswahrscheinlichkeit hängt dabei von der Dichte N und der verbleibenden Propagationslänge l im Medium gemäß dem Beerschen Absorptionsgesetz ab:

$$I_{\text{VUV}}(l) = I_{\text{VUV}}(l=0) \cdot e^{-N\sigma l} \quad (2.33)$$

Dabei ist σ der Absorptionsquerschnitt pro Atom. Zu Beginn des Mediums erzeugte VUV-Photonen haben demnach eine hohe Absorptionswahrscheinlichkeit, wohingegen am Ende des Mediums erzeugte VUV-Photonen nahezu vollständig zum Detektor gelangen. Auf Grund dieser zwei gegeneinander wirkenden Effekte von Erzeugung und Reabsorption ergibt sich die maximale Photonenausbeute im VUV für eine leicht zum Ausgang des Mediums verschobene Position der Fokusebene [49]. Eine glockenförmige Dichteverteilung des Mediums, wie sie im Atomstrahl entlang der Propagationsrichtung der Laserstrahlung vorliegt, verschiebt lediglich die optimale Fokusposition ein wenig.

Um die absolute Fokusposition bezüglich des Zentrums des Atomstrahls angeben zu können, muss zunächst die geometrische Lage des Atomstrahls bestimmt werden. Dazu wird typischerweise die Dichteverteilung des Atomstrahls senkrecht zur Ausbreitungsrichtung und entlang der Propagationsrichtung der Laserstrahlung vermessen. Dies geschieht zum Beispiel, indem die Xenon-Atome mittels eines fokussierten Laserstrahls angeregt werden und anschließend die Fluoreszenz senkrecht zur Ausbreitungsrichtung von Atom- und Laserstrahl detektiert wird. Die Intensität der emittierten Fluoreszenz in Abhängigkeit von der Fokusposition der Laserstrahlung erlaubt die absolute Bestimmung der geometrischen Lage des Atomstrahls und somit die relative Verschiebung der Fokusposition zum Atomstrahl.

Für das verwendete Kopplungsschema erfolgt eine Anregung der Xenon-Atome in den $8d \ ^2[1/2]_1$ Zustand. Auf Grund der experimentellen Gegebenheiten muss die Fluoreszenzdetektion außerhalb der Vakuumkammer erfolgen, so dass die Fluoreszenz bei 106.2 nm durch Relaxation in den Grundzustand nicht beobachtet werden kann. Das Xenon-Atom kann aber auch in die Zustände $6p \ ^2[5/2]_2$ (Emissionswellenlänge 620 nm) und $6p \ ^2[3/2]_2$ (Emissionswellenlänge 665 nm) sowie in weitere Zustände unter Emission von Strahlung mit Wellenlängen von mehr als 1 μm zerfallen. Mittels Farbglassfilter wurde versucht, die Fluoreszenzstrahlung von dem ebenfalls vorhandenen starken Streulichtuntergrund der fundamentalen Laserstrahlung bei der Wellenlänge von 530 nm zu trennen und mit-

tels einer optischen Abbildung orts aufgelöst auf einen Photonenvervielfacher zu projizieren. Die Intensität der Fluoreszenz ist jedoch im Vergleich zum Streulicht so gering, dass sich kein hinreichendes Signal-zu-Rauschverhältnis ergibt. Daher ist es nicht möglich die Dichteverteilung des Atomstrahls zu messen und Rückschlüsse auf die absolute geometrische Lage des Atomstrahls zu ziehen. Aus diesem Grund wurde in Abbildung 29 das Maximum der Konversionseffizienz als Nullpunkt für die Fokusposition gewählt.

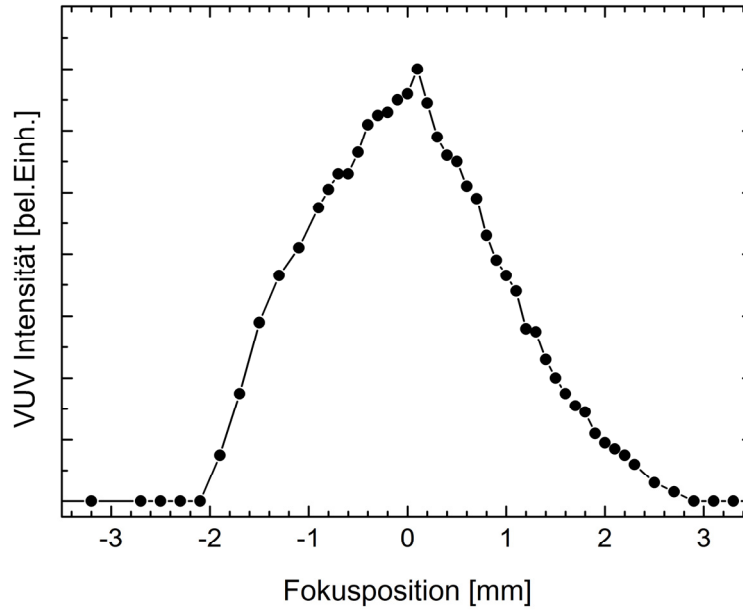


Abbildung 29: Relative Intensität der erzeugten VUV-Strahlung in Abhängigkeit von der Lage des Strahlfokus der fundamentalen Laserstrahlung entlang der Propagationsrichtung z .

Abhängigkeit der erzeugten Intensität von der atomaren Dichte

Die Intensität der erzeugten VUV-Strahlung ist proportional zum Quadrat der Dichte N der Xenon-Atome, siehe Gleichung (2.32). Ebenfalls diskutiert wurde bereits die Reabsorption der VUV-Strahlung auf der verbleibenden Propagationslänge l im Medium, siehe Gleichung (2.33). Als weiter Effekt steigt mit zunehmender Dichte des Mediums zusätzlich die totale Phasenfehlانpassung Δk , wodurch die optische Kohärenzlänge des Mediums abnimmt (siehe oben)

$$L_c = \frac{2\pi}{\Delta k} = \frac{2\pi}{N \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2} \quad (2.34)$$

Für eine gewählte Wechselwirkungsgeometrie, d.h. festgelegten Fokuspunkt, existiert eine optimale Gasdichte für den Frequenzkonversionsprozess. Die einfachste Art, die atomare Dichte im Gasstrahl zu variieren besteht darin, den Vordruck der verwendeten gepulsten Düse zu verändern. Abbildung 30(a) zeigt die Abhängigkeit der erzeugten VUV-Intensität vom Vordruck der Düse. Die VUV-Intensität steigt zunächst nahezu linear mit dem Druck an und stagniert bei ca. 700 mbar. Bei weiter steigendem Druck sinkt die generierte VUV-Intensität zu-

nächst bis zu einem Druck von ca. 1100 mbar und beginnt dann wieder anzusteigen. Bei etwa 1300 mbar ist der Umgebungsdruck im Vakuumspektrometer von $5 \cdot 10^{-4}$ mbar auf 10^{-2} mbar angestiegen, so dass der VUV-Detektor nicht mehr betrieben werden kann. Der optimale Vordruck für die gegebenen experimentellen Parameter beträgt demnach ca. 700 mbar.

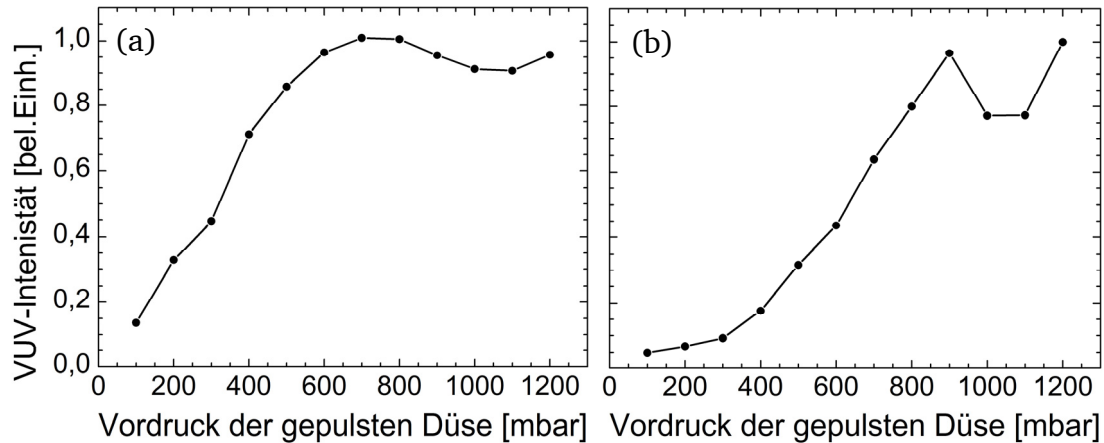


Abbildung 30: Relative Intensität der erzeugten VUV-Strahlung in Abhängigkeit vom Vordruck der gepulsten Düse für die Erzeugung der fünften (a) und dritten (b) Harmonischen der fundamentalen Laserstrahlung.

Der zu beobachtende Abfall und anschließende Anstieg der erzeugten VUV-Intensität bei Vordrücken von mehr als 700 mbar ist im Wesentlichen auf die sinkende Kohärenzlänge zurückzuführen. Im Falle dominierender Reabsorption der VUV-Strahlung wäre kein erneuter Anstieg der Intensität bei Drücken von über 1100 mbar zu erwarten. Um diese Vermutung zu überprüfen wird die gleiche Messung auch für die nicht-resonante Erzeugung der dritten Harmonischen bei 177 nm durchgeführt, siehe Abbildung 30(b).

Auch hier zeigt sich ein deutlicher Einbruch der erzeugten VUV-Strahlung, allerdings erst bei einem Druck von mehr als 900 mbar. Dieser im Vergleich zur Erzeugung der fünften Harmonischen höhere Druck lässt sich mit einer unterschiedlichen Phasenfehlanpassungen für die beiden Frequenzkonversionsprozesse erklären. Die Wellenlängen der erzeugten Strahlung unterschieden sich mit 106,2 nm und 177 nm deutlich. Auf Grund der Dispersion der Xenon-Atome im Atomstrahl ergibt sich eine unterschiedliche Phasengeschwindigkeit der erzeugten Strahlungen und somit eine unterschiedliche Phasenfehlanpassung für die beiden Frequenzkonversionsprozesse mit identischer fundamentaler Strahlung.

Die Gasdichte im Atomstrahl hängt für die verwendete Düse nahezu linear vom Vordruck ab [51]. Nach Gleichung (2.32) erwartet man daher zumindest für den nicht-resonanten Prozess der Frequenzverdreifung einen quadratischen Anstieg der erzeugten VUV-Intensität mit dem Vordruck der gepulsten Düse. Diese Abhängigkeit lässt sich jedoch weder für diesen Prozess, noch für die Erzeugung der fünften Harmonischen beobachten. Vermutlich überdecken Mittelungseffekte über das räumliche Strahlprofil der fundamentalen Laserstrahlung diese einfache Proportionalität.

2.4.2. Erzeugung des Vierwellenmischsignals

Die im vorangegangenen Abschnitt untersuchte Erzeugung der fünften Harmonischen generiert VUV-Strahlung mit der Frequenz $\omega_{VUV} = 5\omega_1$ mittels eines Fünf-Photonen-Prozesses. Für die Realisierung der kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen soll ein zweiter Konversionspfad $\omega_{VUV} = \omega_1 + 2\omega_2$ implementiert werden, auf dem VUV-Strahlung mit der gleichen Frequenz ω_{VUV} durch einen Drei-Photonen-Prozess erzeugt wird. Im folgenden Abschnitt wird dieser Vierwellenmischprozess bezüglich seiner Anwendbarkeit zur kohärenten Kontrolle untersucht.

Experimentelle Parameter

Die Erzeugung der für die folgenden Experimente notwendigen frequenzverdoppelten Laserstrahlung mit der Frequenz ω_2 wurde bereits in Abschnitt 2.3.2 beschrieben. Die Intensität der frequenzverdoppelten Strahlung beträgt $I_2 \approx 1 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$. Die Intensität der fundamentalen Laserstrahlung beträgt für dieses Experiment lediglich $I_1 \approx 6 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$, so dass kein messbarer Untergrund an VUV-Strahlung aus der Erzeugung der fünften Harmonischen existiert. Diese Intensitäten können über den Spektralbereich von 530.2 nm bis 546 nm konstant erzeugt werden. Für kürzere Wellenlängen können auf Grund von steigenden Verlusten an den verwendeten Optiken und sinkender Effizienz des im Farbstoffverstärker verwendeten Laserfarbstoffs nur geringere Intensitäten der frequenzverdoppelten Strahlung erzielt werden. Die dabei vorliegenden Pulsenergien von weniger als 5 μJ können mit den vorhandenen Messgeräten nicht zuverlässig und reproduzierbar bestimmt werden. Dies ist jedoch für spektroskopische Untersuchungen, wie sie im Folgenden durchgeführt werden, unerlässlich.

Die Fokuspositionen von fundamentalem und frequenzverdoppeltem Laserstrahl relativ zum Atomstrahl (Stagnationsdruck der gepulsten Düse 700 mbar) werden entsprechend den experimentellen Ergebnissen aus Abschnitt 2.4.1 auf maximale Konversionseffizienz eingestellt. Der räumliche Überlapp der beiden Laserstrahlen erfolgt zunächst mittels der CCD-Kamera vor der Vakuumapparatur und wird dann auf optimales Signal nachjustiert. Der zeitliche Überlapp wird auf maximales Vierwellenmischsignal mittels der optischen Verzögerungstrecke eingestellt.

Spektrale Abhängigkeit des Vierwellenmischsignals

In Abschnitt 2.4.1 wurden drei atomare Übergänge im Xenon identifiziert, die eine hinreichende Überhöhung der Frequenzverfünffachung ermöglichen. Zur Umsetzung von kohärenten Kontrolltechniken ist es notwendig, dass diese Übergänge auch eine ausreichende Überhöhung der Vierwellenmischung erlauben. Nur dann können beide Konversionsprozesse zeitgleich getrieben werden. Aus diesem Grund wird zunächst die Abhängigkeit der mittels Vierwellenmischung erzeugten VUV-Strahlung von der fundamentalen Laserwellenlänge untersucht.

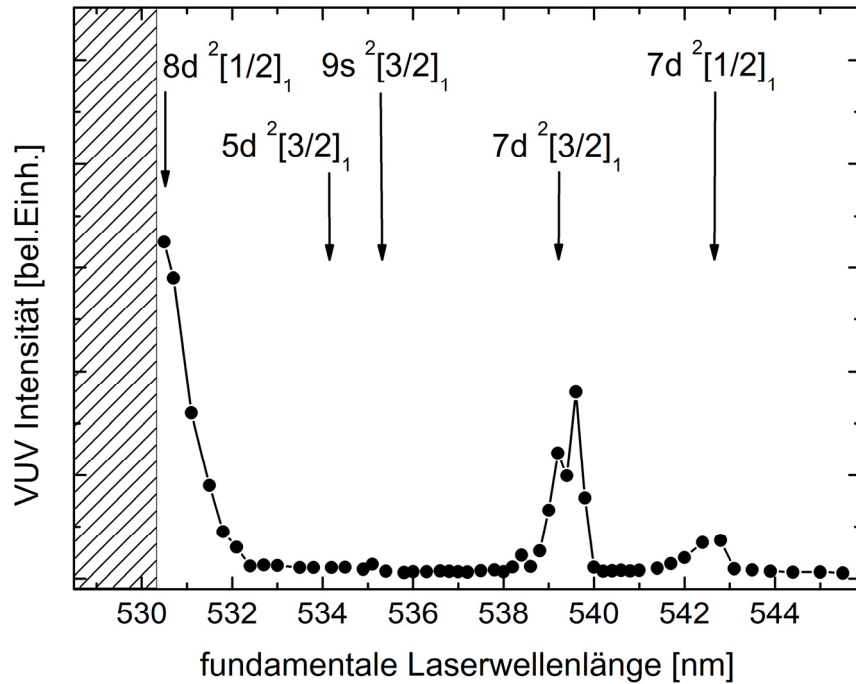


Abbildung 31: Relative Intensität der mittels Vierwellenmischung erzeugten VUV-Strahlung. Der grau schraffierte Bereich ist im Gegensatz zur Erzeugung der fünften Harmonischen spektroskopisch nicht zugänglich, siehe Text. Die Pfeile markieren atomare Übergänge vom Grundzustand $5p^6\ ^1S_0$ des Xenon-Atoms in den jeweils angegebenen angeregten Zustand.

Abbildung 31 zeigt das Resultat der entsprechenden Messung. Man erkennt zwei deutliche Intensitätsmaxima bei den Wellenlängen 539.5 nm und 542.5 nm. Weiterhin ist die langwellige Flanke eines dritten Maximums am linken Rand des Spektrums bei einer Wellenlänge von 530.2 nm zu sehen. Die entsprechenden Wellenlängen der erzeugten VUV-Strahlung sind 107.9 nm, 108.5 nm sowie etwa 106.0 nm. Im Rahmen der Messgenauigkeit (0.2 nm) entsprechen diese spektral den bereits in Abschnitt 2.4.1 beobachteten atomaren Übergängen im Xenon-Atom und somit einer resonanten Überhöhung des Vierwellenmischprozesses. Die bereits bei der Erzeugung der fünften Harmonischen nicht zu beobachtenden Übergänge vom Grundzustand $5p\ ^1S_0$ in die angeregten Zustände $5d\ ^2[3/2]_1$ und $9s\ ^2[3/2]_1$ ergeben auch bei der Vierwellenmischung keine signifikante Intensitätssteigerung.

In Abbildung 31 ist wieder die gute spektrale Übereinstimmung von atomarer Resonanz und Intensitätsmaxima auffällig. Ebenso sind die erhaltenen Maxima annähernd symmetrisch. Daher lässt sich auch hier schlussfolgern, dass der Vierwellenmischprozess ebenfalls keinen signifikanten Phasenanpassungseffekten im Medium unterliegt. Andernfalls wäre die bereits zuvor diskutierte spektrale Blauverschiebung der Intensitätsmaxima zu erwarten. Bei dem Intensitätsmaximum in der Nähe der $5p\ ^1S_0 \leftrightarrow 7d\ ^2[1/2]_1$ Resonanz ist bereits eine leichte Asymmetrie im Kurvenverlauf zu erkennen. Die kurzwellige Flanke fällt langsamer ab als die langwellige Flanke des Maximums, was auf einsetzende Phasenanpassungseffekte des Vierwellenmischprozesses hindeutet.

Die gemessenen spektralen Abhängigkeiten der Konversionseffizienz von Vierwellenmischung und Erzeugung der fünften Harmonischen ermöglichen die Wahl geeigneter experimenteller Parameter zur Realisierung der kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen.

Zeitgleiche Erzeugung der fünften Harmonischen und Vierwellenmischung

Aus den Spektren in Abbildung 26 und Abbildung 31 kann man entnehmen, dass eine zeitgleiche resonant-überhöhte Frequenzkonversion sowohl für den Fünf-Photonen-Prozess der Erzeugung der fünften Harmonischen als auch für den Drei-Photonen-Prozess der Vierwellenmischung möglich. Dies ist die Grundlage zur kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen. Am Beispiel des Übergangs vom Grundzustand $5p^1S_0$ in den angeregten Zustand $7d^2[1/2]_1$ bei einer Wellenlänge der fundamentalen Laserstrahlung von 542.5 nm wird im Folgenden die Möglichkeit der simultanen Realisierung der beiden bisher diskutierten Konversionsprozesse veranschaulicht.

Abbildung 32 zeigt die erzeugte Strahlungsintensität im VUV gegenüber der fundamentalen Laserwellenlänge mit (rote Dreiecke) und ohne (schwarze Kreise) frequenzverdoppelter Strahlung in halb-logarithmischer Darstellung. Die Intensitäten der fundamentalen und frequenzverdoppelten Strahlung betragen bei dieser Messung $I_1 \approx 1 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bzw. $I_2 \approx 2 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$. Die Intensität der erzeugten VUV-Strahlung wurde auf das Maximum im Falle der reinen Frequenzverfünffachung normiert.

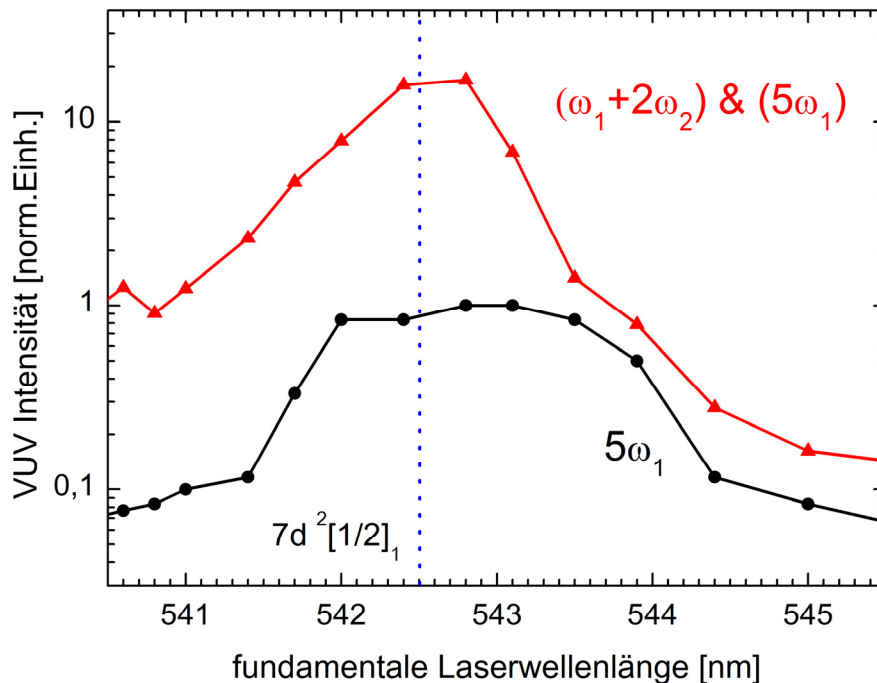


Abbildung 32: Relative Intensität der erzeugten VUV-Strahlung für reine Frequenzverfünffachung (schwarz) und für simultane Frequenzverfünffachung und Vierwellenmischung (rot) in Abhängigkeit von der Wellenlänge der fundamentalen Laserstrahlung im Bereich der $5p^6^1S_0 \leftrightarrow 7d^2[1/2]_1$ Resonanz in Xenon.

Es ist zu erkennen, dass die Intensitätsmaxima sowohl für die reine Erzeugung der fünften Harmonischen als auch für die Superposition aus Erzeugung der fünften Harmonischen und Vierwellenmischung spektral überlappen. Die blau gestrichelte Linie markiert die spektrale Position des Übergangs $5p\ ^1S_0 \leftrightarrow 7d\ ^2[1/2]_1$. Das Intensitätsmaximum der erzeugten VUV-Strahlung ist leicht gegenüber der Resonanz hin zu längeren Wellenlängen verschoben. Diese Verschiebung von 0.2 nm bis 0.3 nm liegt im Rahmen der Messgenauigkeit der Wellenlänge der fundamentalen Laserstrahlung und ist daher nicht signifikant.

Die bereits in Abbildung 31 zu erkennende leichte Asymmetrie des Vierwellenmischsignals ist hier noch einmal deutlich zu erkennen und weist auf eine geringfügige Phasenfehlانpassung des Vierwellenmischprozesses im Medium hin. Der Intensitätsverlauf der VUV-Strahlung im Falle reiner Erzeugung der fünften Harmonischen ist im Bereich des Maximums abgeflacht. Daraus resultiert eine gewisse Stabilität des Frequenzkonversionsprozesses gegenüber spektralen Verstimmungen. Dieser Intensitätsverlauf scheint charakteristisch zu sein, da er sich auch für die weiteren Übergänge in Abbildung 26 andeutet.

Auffällig in Abbildung 32 ist die deutlich unterschiedliche Konversionseffizienz der beiden Mischprozesse. Trotz der um einen Faktor 50 kleineren Intensität der frequenzverdoppelten Strahlung im Vergleich zur fundamentalen Strahlung ist die Konversionseffizienz des Vierwellenmischprozesses bei den vorliegenden Intensitäten um mehr als einen Faktor 10 größer. Dies liegt an der wahrscheinlich deutlich größeren Suszeptibilität des Vierwellenmischprozesses auf Grund der niedrigeren Ordnung (3 statt 5) und der geringeren Verstimmung der frequenzverdoppelten Strahlung von atomaren Resonanzen (vgl. dazu Gleichungen (2.12) bis (2.14) und (2.17)).

Systematische Untersuchungen zur Abhängigkeit des Vierwellenmischprozesses von der Intensität von fundamentaler und frequenzverdoppelter Strahlung sowie zur Wechselwirkungsgeometrie, d.h. Fokusposition, erwiesen sich auf Grund der Erzeugung der Strahlungen sowie der Abhängigkeit der beiden Konversionsprozesse durch das gewählte Kopplungsschema als nicht durchführbar. Eine Optimierung der Dichte des Mediums ist bereits für den sensitiveren Prozess der Erzeugung der fünften Harmonischen erfolgt und wird an dieser Stelle auch nicht weiter verfolgt. Aus der zeitlichen Verzögerung von fundamentalem und frequenzverdoppeltem Laserpuls wurde in Abschnitt 2.3.2 bereits die Pulsdauer des Letzteren abgeschätzt.

2.4.3. Kohärente Kontrolle der Frequenzkonversion

In den beiden vorangegangenen Abschnitten wurden zwei Summenfrequenzmischprozesse zur Realisierung der kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen untersucht. Es wurde gezeigt, dass es unter gewissen Bedingungen möglich ist, zeitgleich die fünfte Harmonische $\omega_{VUV} = 5\omega_1$ sowie ein Vierwellenmischsignal $\omega_{VUV} = \omega_1 + 2\omega_2$ zu erzeugen, welche beide VUV-Strahlungen mit identischer Frequenz ω_{VUV} generieren. Durch Variation der relativen Phase zwischen diesen beiden Konversionsprozessen bzw. der beteiligten Laserfelder soll im Folgenden die Anwendbarkeit der kohärenten Kontrolle auf Frequenz-

konversionsprozesse mit ultra-kurzen Laserpulsen zur Erzeugung von Strahlung im tiefen VUV-Spektralbereich demonstriert werden.

Variation der relativen Phase φ_R zwischen den treibenden Laserfeldern

Für die Variation der relativen Phase zwischen dem fundamentalen Laserfeld und dem frequenzverdoppeltem Laserfeld befindet sich im Strahlengang der fundamentalen Strahlung eine Gaszelle, welche mit variablem Druck unterschiedlicher Gase gefüllt werden kann (siehe Abbildung 33). Die Phasenverschiebung φ_R der fundamentalen Laserstrahlung mit der Wellenlänge $\lambda_1 = 530$ nm hängt dabei in folgender Weise von der Änderung des Gasdrucks Δp_X ab:

$$\varphi_R = \frac{2\pi \cdot L}{\lambda_1} \cdot \left(\frac{n_{X0} - 1}{p_0} \right) \cdot \Delta p_X \quad (2.35)$$

Dabei ist $L = 10$ cm die geometrische Länge der Gaszelle und n_{X0} der Brechungsindex des Gases X beim Druck p_0 . Je nach verwendetem Gas variiert die notwendige Druckänderung Δp_X abhängig vom Brechungsindex des jeweiligen Gases. Für Umgebungsluft sowie die Edelgase Helium, Neon und Argon sind die Brechungsindizes der Natrium-D-Linie bei 589.5 nm sowie die notwendigen Druckänderungen für eine Phasenvariation von $\varphi_R = 2\pi$ in Tabelle 1 aufgelistet [53].

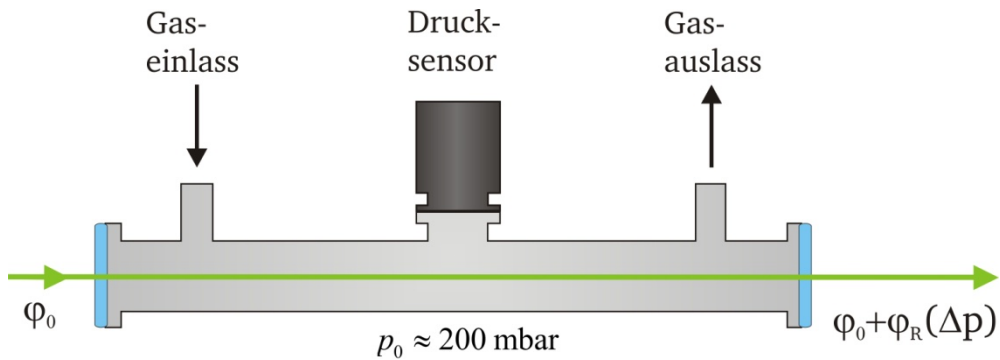


Abbildung 33: Schematische Darstellung der Gaszelle zur Erzeugung einer Phasenverschiebung der fundamentalen Laserstrahlung.

Auf Grund der variierenden Umgebungsbedingungen im Labor (Temperatur, Luftfeuchtigkeit, CO_2 -Gehalt) und der damit verbundenen täglichen Schwankung des Brechungsindex eignet sich Luft nicht für die Durchführung der Experimente. Es wird daher mit Edelgasen gearbeitet, um konstante experimentelle Bedingungen zu gewährleisten. Während der Experimente erfolgt eine dynamische Änderung des Gasdruckes in der Zelle. Die erzeugte Intensität an VUV-Strahlung wird in Abhängigkeit vom Gasdruck und somit der Phasenverschiebung aufgenommen. Außer dieser Phasenverschiebung dürfen während der

Messung nur sehr geringe bis gar keine Phasendrifts zwischen der fundamentalen und der frequenzverdoppelten Strahlung auftreten. Diese würden eine eventuelle phasenabhängige Intensitätsmodulation überdecken. Um thermische Drifts zu vermeiden, muss die Dauer der Messung für eine Kurve so gering wie möglich gehalten werden. Trotz einer kurzen Messzeit müssen aber noch genügend Datenpunkte aufgenommen werden, um die druckabhängigen Intensitätsmodulationen der erzeugten VUV-Strahlung hinreichend auflösen zu können. Für große Druckvariationen, wie sie zum Beispiel mit Helium oder Neon als phasenschiebendem Medium notwendig sind, bedeutet dies eine schnelle Druckvariation und somit vergleichsweise hohe Strömungsgeschwindigkeiten des Gases in der Zelle. Diese hohen Strömungsgeschwindigkeiten können wiederum starke Turbulenzen im Gasfluss verursachen, welche zu ausgeprägten inhomogenen Gasverteilungen und somit räumlichen Brechungsindexvariationen führen. Um dies zu vermeiden wird in dem folgenden Experiment Argon als phasenschiebendes Medium verwendet. Die für eine Phasenverschiebung von 2π notwendige Druckänderung ist am geringsten beträgt lediglich 16 mbar (siehe Tabelle 1). Diese Variation des Gasdrucks kann in wenigen Minuten mit verhältnismäßig geringen Strömungsgeschwindigkeiten realisiert werden.

Gas	Luft	Helium	Neon	Argon
$n_{x0} - 1$	$2.9 \cdot 10^{-4}$	$3.5 \cdot 10^{-5}$	$6.7 \cdot 10^{-5}$	$2.83 \cdot 10^{-4}$
$\Delta p_x^{2\pi}$ [mbar]	16	131	68	16

Tabelle 1: Brechungsindex verschiedener Gase für die Natrium-D-Linie (589.9 nm) sowie die benötigte Druckänderung für eine Phasenverschiebung des elektromagnetischen Feldes von 2π .

In der Literatur finden sich nur sehr wenige Werte für die Brechungsindizes der in Tabelle 1 aufgeführten Gase für Strahlung unterschiedlicher Wellenlängen. Aus diesem Grund wurde der Brechungsindex von Argon bei einer Wellenlänge von $\lambda = 532$ nm und einem Druck von $p_0 = 1013$ mbar mit einem Jamin-Interferometer zu ca. $n_{Ar}^{532nm} \approx 1.00034$ bestimmt (siehe Anhang). Mit diesem Wert kann die Phasenverschiebung φ_R von Strahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda_1 = 530$ nm in Abhängigkeit des Gasdruckes in der Zelle relativ genau berechnet werden.

Experimentelle Realisierung der kohärenten Kontrolle

Für die Experimente zur kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen wird die fundamentale Laserstrahlung Fünf-Photonen-resonant auf den Übergang $5p \ ^1S_0 \leftrightarrow 8d \ ^2[1/2]_1$ abgestimmt. Die Intensitäten von fundamentaler und frequenzverdoppelter Strahlung werden so gewählt, dass die beiden Konversionsprozesse möglichst identische Intensitäten der VUV-Strahlung erzeugen. Problematisch dabei ist, dass die Intensitäten der bei den Prozessen involvierten Strahlungen nicht unabhängig voneinander sind. Außerdem erfolgt stets eine kohärente, d.h. phasenabhängige, Überlagerung der beiden Konversionspfade. Für eine relative Phase $\varphi_R = \pi/8$ zwischen dem fundamentalen und dem fre-

quenzverdoppelten Laserfeld verschwindet der oszillierende Term in Gleichung (2.30). Die erzeugte Intensität im VUV ist dann lediglich proportional zum Integral über die Summe der einzelnen Polarisationen $|\tilde{P}_{FWM}^{(3)}|^2$ und $|\tilde{P}_{5HG}^{(5)}|^2$. Es wurde daher versucht die auf den einzelnen Konversionspfaden erzeugten Intensitäten der VUV-Strahlung bei einer relativen Phasenverschiebung $\varphi_R = \pi/8$ (siehe unten) einzustellen. Die gewählten Intensitäten betragen $I_1 \approx 3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ und $I_2 \approx 7 \cdot 10^{10} \text{ W/cm}^2$. Die Justage der Laserstrahlen bezüglich des Atomstrahls (Stagnationsdruck der Düse 700 mbar) erfolgt analog zu Abschnitt 2.4.2.

Der Interferenzterm in Gleichung (2.30) oszilliert mit einer Phase $\varphi_P = 4\varphi_R$. Das bedeutet, dass für eine volle Oszillation der Intensität der erzeugten VUV-Strahlung lediglich eine relative Phasenverschiebung der Laserfelder von $\varphi_R = 2\pi/4 = \pi/2$ notwendig ist. Dies entspricht einer Variation des Argondruckes von etwa 4 mbar.

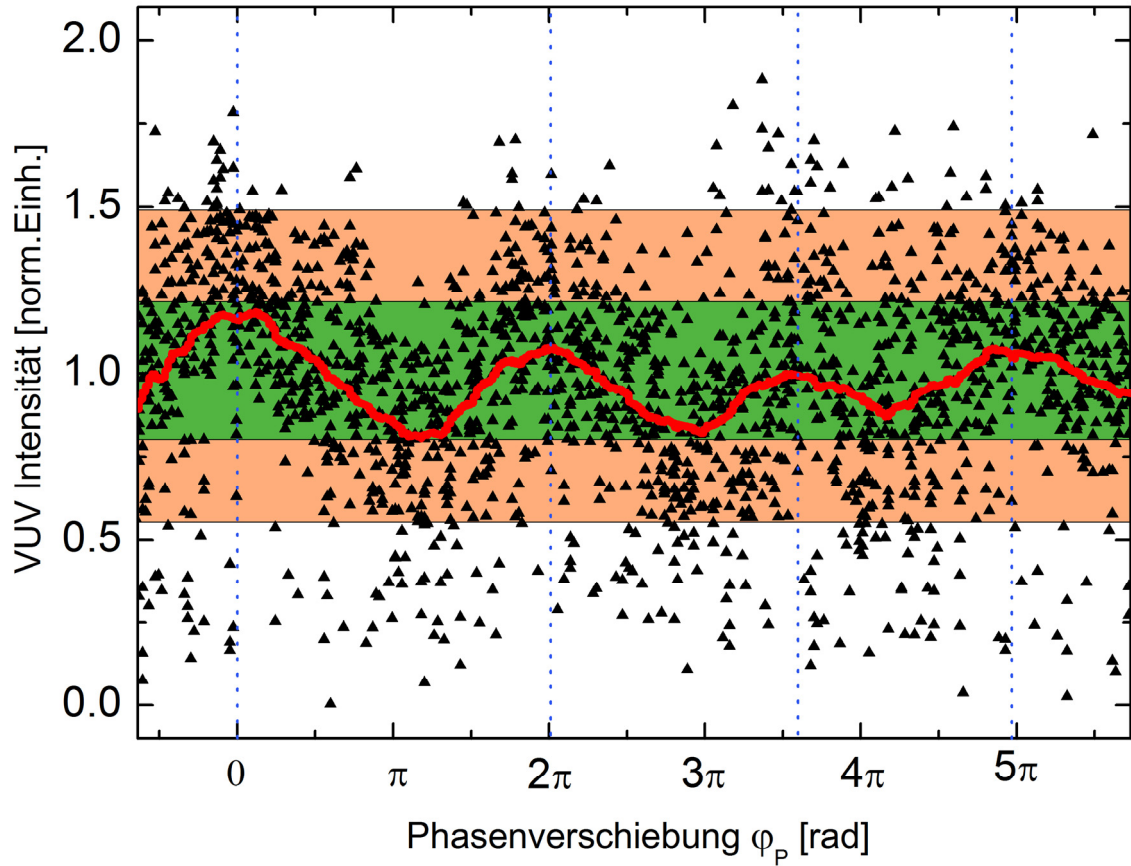


Abbildung 34: Normierte Intensität der simultan auf zwei Konversionspfaden erzeugten VUV-Strahlung in Abhängigkeit von der Phasenvariation zwischen den beiden Konversionspfaden. Die schwarzen Dreiecke zeigen Einzelschussdaten, die rote Linie zeigt einen gleitenden Durchschnitt aus den Einzelschussdaten. Die Phasenverschiebung wurde aus den experimentellen Parametern berechnet (siehe Text). Der grün hinterlegte Bereich verdeutlicht den Kontrast der gemittelten Daten, der rot hinterlegte Bereich den Kontrast der Einzelschussdaten im Bereich der ersten Oszillation. Die blauen gestrichelten Linien markieren die Intensitätsmaxima der erzeugten VUV-Strahlung.

Für die Messung wird die Gaszelle zunächst mit Argon bei einem statischen Druck von $p_0 = 200$ mbar befüllt. Anschließend wird der Gasdruck langsam erhöht und zeitgleich die Intensität der erzeugten VUV-Strahlung detektiert. Abbildung 34 zeigt die Abhängigkeit der Intensität der VUV-Strahlung von der Variation der (aus der Druckänderung berechneten) Phase φ_p . Die schwarzen Dreiecke repräsentieren Einzelschussdaten und die rote Linie zeigt einen gleitenden Durchschnitt über 200 Punkte. Zeitgleich wird mittels einer integrierenden Photodiode (siehe Abbildung 25) die Pulsenergie des fundamentalen Laserpulses aufgenommen. Um die Signalfluktuationen der erzeugten VUV-Intensität zu reduzieren, werden nur Messdaten für Pulsenergien in einem Intervall von $\pm 3\%$ um eine gewählte Pulsenergie aufgenommen. Dies erhöht zwar wiederum die Messzeit, ist aber auf Grund der starken Abhängigkeit der Intensität der erzeugten Strahlung von der Intensität der einfallenden Strahlung zwingend notwendig. Das verbleibende Rauschen begründet sich im Wesentlichen durch mechanische Vibrationen des experimentellen Aufbaus, die zu einer vergleichsweise schnellen Variation der relativen Phase führen.

Bereits an den Einzelschussdaten erkennt man eine Variation der erzeugten VUV-Intensität in Abhängigkeit von der Phasenverschiebung φ_p , d.h. von der relativen Phase φ_R zwischen fundamentalem und frequenzverdoppeltem Laserfeld. Die gemittelten Daten zeigen eine deutlich ausgeprägte Oszillation mit sinkender Oszillationsperiode.

Abbildung 34 stellt ein zentrales Ergebnis der vorliegenden Arbeit dar. Erstmals konnte die kohärente Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen zur Erzeugung von Strahlung im VUV-Spektralbereich mittels ultra-kurzer (ps) Laserpulsen demonstriert werden. Die absolut generierte Intensität der VUV-Strahlung wurde durch Quanteninterferenz zweier simultaner Konversionsprozesse höherer Ordnung moduliert. Dabei wurde lediglich die relative Phase zwischen den treibenden Laserfeldern variiert, sämtliche anderen experimentellen Parameter blieben unverändert.

Die beiden folgenden Unterabschnitte diskutieren die Stärke der Intensitätsmodulation sowie die veränderliche Oszillationsperiode des in Abbildung 34 dargestellten Ergebnisses.

Kontrast

Ein Maß für die Stärke eines Interferenzeffektes ist der Kontrast:

$$K = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \quad (2.36)$$

Im Bereich der ersten Oszillation, d.h. $0 \leq \varphi_p \leq 2\pi$, ergibt sich der Kontrast der gemittelten Daten zu $K \approx 20\%$ (grüner Balken in Abbildung 34). Der Kontrast der Einzelschussdaten beträgt in diesem Bereich sogar circa 45% (roter Balken in Abbildung 34). Der maximale Kontrast von 100% wird bei dieser Messung nicht erreicht. Dies liegt zum einen an der bereits diskutierten schwierigen Wahl der Intensitäten von fundamentaler und frequenzverdoppelter Laserstrahlung. Es

wurde versucht die Intensitäten bei einer Phasenverschiebung $\varphi_P = \pi/2$ beziehungsweise $\varphi_R = \pi/8$ entsprechend anzupassen, da bei dieser Phasenverschiebung der Interferenzterm in Gleichung (2.30) verschwindet. Auf Grund des trotz Filterung der Pulsenergie verbleibenden starken Rauschens von ca. 30% ist eine gute Anpassung der auf den jeweiligen Konversionspfaden generierten VUV-Intensität nur eingeschränkt möglich. Allerdings reduziert sich der Kontrast für ein Verhältnis von $\tilde{P}_{FWM}^{(3)} : \tilde{P}_{5HG}^{(5)} = 0.7$ lediglich auf 90%. Erst wenn das Verhältnis der induzierten Polarisationen schlechter als 0.5 wird, fällt der Kontrast auf einen Wert von ca. 40%. Ein derartig ausgeprägtes Missverhältnis der jeweiligen Polarisationen kann nahezu ausgeschlossen werden.

Ein weiterer Aspekt, der zu einem reduzierten Kontrast führt, betrifft die Phasenfronten von fundamentaler und frequenzverdoppelter Laserstrahlung im Wechselwirkungsgebiet. Bei der bisherigen Beschreibung von Frequenzkonversionsprozessen wurde lediglich die räumliche Ausdehnung der Laserstrahlung in Propagationsrichtung berücksichtigt. Für quantitative Aussagen muss auch die räumliche Ausdehnung senkrecht zur Propagationsachse beachtet werden. Dabei lässt sich die Näherung ebener Wellen nicht mehr aufrechterhalten. Die einfachste Lösung der paraxialen Wellengleichung ist durch den Gaußstrahl gegeben

$$E_0(\vec{r}) = \underbrace{\frac{A}{1 + (z/z_0)^2}}_{\text{Verbreiterung der Wellenfront}} \cdot \underbrace{e^{-\left(\frac{r}{w(z)}\right)^2}}_{\text{räumliche Einhüllende}} \cdot \underbrace{e^{-i\Phi(z)}}_{\text{Phasenentwicklung entlang z-Achse}} \cdot \underbrace{e^{\frac{k}{2} \frac{r^2}{R(z)}}}_{\text{Phasenfronten senkrecht zur z-Achse}} \quad (2.37)$$

Der Ortsvektor \vec{r} ist dabei in Zylinderkoordinaten gegeben. Die Propagationsrichtung definiert die z-Achse und r ist der senkrechte Abstand zu dieser Achse. Der Strahldurchmesser (1/e-Breite) ist durch $w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z/z_0)^2}$ mit der minimalen Strahltaile w_0 und der Rayleigh-Länge $z_0 = \pi w_0^2 / \lambda$ gegeben. Dabei ist λ die Wellenlänge der propagierenden Strahlung. Die ersten beiden Terme in Gleichung (2.37) beschreiben die Einhüllende der Feldverteilung in allen drei Raumrichtungen. Der dritte Term beschreibt mit der Phasenfunktion $\Phi(z) = kz - \arctan(z/z_0)$ die Entwicklung der Phase des elektromagnetischen Feldes entlang der Propagationsachse z. Die Phase senkrecht zur z-Achse ist durch den letzten Term mit dem Krümmungsradius $R(z) = z \cdot [1 + (z/z_0)^2]$ gegeben. Außerhalb der Fokusebene folgen somit gekrümmte anstatt ebener Phasenfronten, siehe auch Abbildung 35.

Der Konversionsprozess der Erzeugung der fünften Harmonischen wird durch die gekrümmten Phasenfronten nicht wesentlich beeinflusst. Der Vierwellenmischprozess hingegen unterliegt auf Grund unterschiedlicher Phasenfronten von fundamentalem und frequenzverdoppeltem Licht einer zusätzlichen Phasenfehlanpassung senkrecht zur Ausbreitungsrichtung.

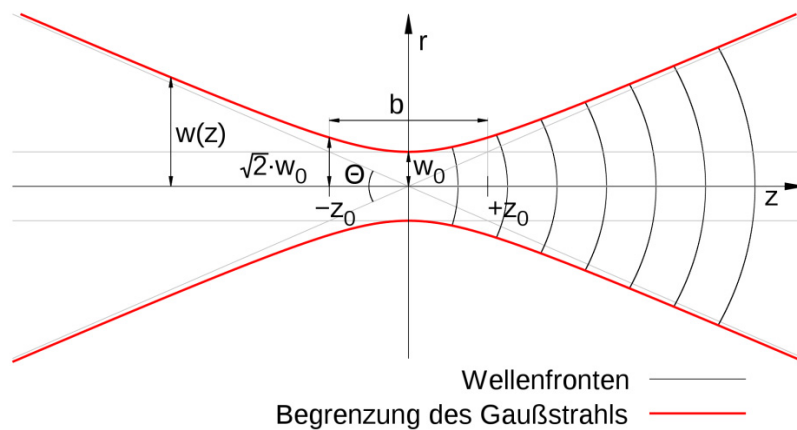


Abbildung 35: Schematische Darstellung eines Gaußstrahls, entnommen aus [54]

Ein Maß für die Phasenfehlanpassung ist der konfokale Parameter $b = 2z_0$. Bei gleichem konfokalem Parameter entwickeln sich die Phasenfronten von fundamentaler und frequenzverdoppelter Strahlung identisch. In diesem Fall tritt keine räumliche Phasenfehlanpassung auf. Bei unterschiedlichem konfokalem Parameter variiert die relative Phase der beiden Laserfelder in Abhängigkeit vom Ort. In erster Linie beeinflusst dies die Effizienz des Vierwellenmischprozesses: Nur für eine hinreichend kleine Phasenfehlanpassung erfolgt eine signifikante Frequenzkonversion. Ein weiteres Problem ergibt sich bei der Betrachtung der erzeugten VUV-Strahlung. Die Phasenfronten der durch Frequenzverfünffachung und Vierwellenmischung generierten VUV-Strahlung stimmen nicht mehr überein. Somit ist die Interferenz dieser beiden Strahlungen unvollständig oder verschwindet ganz. Die Krümmung der Phasenfronten beeinflusst in wesentlichem Maße den Kontrast der in Abbildung 34 zu beobachtenden Interferenzstruktur.

Aus den in Abschnitt 2.3.2 diskutierten Strahlparametern berechnen sich die konfokalen Parameter von fundamentaler und frequenzverdoppelter Laserstrahlung zu $b_1 \approx 0.2 \text{ mm}$ und $b_2 \approx 5.4 \text{ mm}$. Die beiden konfokalen Parameter unterscheiden sich bei dem vorgestellten experimentellen Aufbau um mehr als einen Faktor 25. Die Phase der frequenzverdoppelten Strahlung ist über die Wechselwirkungsstrecke von ca. 1 mm nahezu konstant, während die Phase der fundamentalen Laserstrahlung stark variiert. Idealerweise sollten die konfokalen Parameter identisch gewählt werden. Für diesen Fall lässt sich aus der Definition der Rayleigh-Länge und den abhängigen Wellenlängen von fundamentaler und frequenzverdoppelter Strahlung ($\lambda_1 = 2\lambda_2$) die Bedingung $d_1 = \sqrt{2} \cdot d_2$ für die Strahldurchmesser (FWHM der Intensität) $d_{1,2}$ von fundamentalem beziehungsweise frequenzverdoppeltem Laserstrahl ableiten. Der Strahldurchmesser d_1 muss demnach größer sein als der Durchmesser d_2 . Der Strahldurchmesser d_1 kann im Experiment nicht vergrößert werden, da sonst die für die Frequenzkonversion notwendigen Intensitäten $I_1 \propto 1/d_1$ nicht mehr erreicht werden. Folglich muss der Strahldurchmesser d_2 der frequenzverdoppelten Laserstrahlung reduziert werden. Dies ist im Prinzip durch die Verwendung einer Linse mit kürzerer Brennweite f als der bisher verwendeten Linse (vgl. Abschnitt 2.3.2 und Abbildung 25) möglich, da bei der Fokussierung von Gaußstrahlen für die minimale

Strahltaile die Beziehung $d_{min} \propto f/\lambda$ [55] gilt. Auf Grund des geringen Platzes vor der Vakuumapparatur kann eine Linse kürzerer Brennweite nicht mehr korrekt positioniert werden. Daher stellt der in Abschnitt 2.3.2 beschriebene experimentelle Aufbau die im Rahmen der Möglichkeiten optimale Konfiguration dar.

Oszillationsperiode

In Abbildung 34 lässt sich erkennen, dass die Oszillationsperiode der erzeugten VUV-Intensität für steigende Phasenverschiebung zwischen den Konversionsprozessen abnimmt. Beträgt die Phasenverschiebung für die erste Oszillation noch wie erwartet 2π , fällt sie für die zweite Oszillation auf 1.6π und für die dritte Oszillation auf 1.4π . Die wahrscheinlichste Ursache für diese Abnahme der Oszillationsperiode über mehrere Oszillationen hinweg ist eine zusätzliche Phasenverschiebung auf Grund von thermischen oder mechanischen Verschiebungen. Die Oszillationsperiode nimmt von der ersten zur zweiten Oszillation um ca. 20% ab. Um einen Effekt dieser Größenordnung zu bewirken, müsste sich zum Beispiel die Länge der Gaszelle ebenfalls um 20% ändern. Bei einer Länge von 10 cm entspräche dies einer unrealistischen Längenänderung von 2 cm in der Messzeit von ca. 5 bis 10 Minuten. Dieser Effekt kann daher ausgeschlossen werden. Möglich ist jedoch eine Längenänderung der optischen Verzögerungstrecke im Strahlengang der frequenzverdoppelten Strahlung. Die Synchronisation von fundamentalem und frequenzverdoppeltem Laserpuls im Wechselwirkungsgebiet erfolgt über eine geometrische Längenänderung der Verzögerungstrecke mittels eines Linearverschiebetisches. Das Verstellen des Linearverschiebetisches geschieht mit einer differentiellen Mikrometerschraube (Auflösung $25\text{ }\mu\text{m}$ pro Umdrehung), wobei die Verschiebeeinheit mit einer Feder gegen die Stellschraube gedrückt wird. Auf Grund dieses Druckes sowie thermischen Effekten kann eine geringfügige Positionsänderung der Stellschraube bzw. der Verschiebeeinheit und somit eine Änderung der Länge der Verzögerungstrecke bewirkt werden. Um eine Phasenverschiebung von $0.2 \cdot (2\pi)$ bei dem verwendeten Koppplungsschema zu erzielen, genügen bereits Längenänderungen von wenigen 10 nm in dem Messzeitraum von 5 bis 10 Minuten. Dies ist durchaus im Bereich des Möglichen.

2.5. Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse

Erstmals konnte die kohärente Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen mit ultra-kurzen (ps) Laserpulsen demonstriert werden. Dabei wurde elektromagnetische Strahlung im tiefen vakuum-ultravioletten Spektralbereich mit einer Photonenenergie knapp unterhalb der Ionisationsgrenze von Xenon-Atomen erzeugt.

Durch Erzeugung der fünften Harmonischen eines fundamentalen Laserpulses mit einer Wellenlänge von $\lambda_1 = 530\text{ nm}$ sowie eines simultanen Vierwellenmischprozesses von fundamentalem Laserpuls und dessen frequenzverdoppeltem Laserpuls mit einer Wellenlänge von $\lambda_2 = 265\text{ nm}$ wurde in einem dichten Atomstrahl aus Xenon-Atomen VUV-Strahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda_{VUV} = 106\text{ nm}$ generiert. Beide Konversionsprozesse wurden resonant überhört,

indem die Laserstrahlung Mehr-Photonen-resonant auf den zuvor spektroskopisch bestimmten atomaren Übergang vom Grundzustand $5p^6\ ^1S_0$ in den angeregten Zustand $8d\ ^2[1/2]_1$ der Xenon-Atome abgestimmt wurde.

Die Wechselwirkungsbedingungen wurden durch experimentelle Messungen optimiert und es wurde sichergestellt, dass keine signifikanten Phasenfehlانpassungen der beiden Konversionsprozesse vorliegen. Anschließend wurde die Phase der fundamentalen Laserstrahlung bezüglich der frequenzverdoppelten Laserstrahlung in einer Gaszelle mit variablem Gasdruck von Argon verschoben. Aus dieser Phasenverschiebung der Strahlungsfelder resultiert eine Phasenverschiebung der im Xenon-Atom induzierten Polarisationen wodurch es zur Quanteninterferenz der beiden simultanen Konversionspfade kommt. Als Folge dessen ergibt sich eine ausgeprägte Oszillation der erzeugten Intensität im VUV-Spektralbereich in Abhängigkeit vom Argon Gasdruck beziehungsweise der Phasenverschiebung der induzierten Polarisationen. Der Kontrast dieser Oszillation beträgt ca. 20%, wobei der maximale Kontrast von 100% auf Grund der Geometrie des Aufbaus nicht erzielt werden konnte. Die Daten zeigen klar die Möglichkeit zur Manipulation der Intensität der erzeugten VUV-Strahlung durch Wahl der relativen Phase der Laserfelder (d.h. auch ohne die Intensität der Felder zu variieren). Die Daten demonstrieren die typischen Charakteristiken der kohärenten Kontrolle sowie deren Potential bei der Frequenzkonversion von ultra-kurzen (ps) Laserpulsen in den VUV-Spektralbereich mittels Konversionsprozessen höherer Ordnung.

3. Adiabatisch getriebene Summenfrequenzmischung

Ziel dieser Arbeit ist Erzeugung von ultra-kurzen Laserpulsen im vakuum-ultravioletten Spektralbereich. Das vorherige Kapitel 2 befasste sich mit der kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen durch Quanteninterferenz. Die absolute Konversionseffizienz ist dabei jedoch gering und liegt für die diskutierten Prozesse in der Größenordnung von 10^{-4} bis 10^{-5} [40,56].

Eine Möglichkeit zur Steigerung der Effizienz ist die kohärente Präparation des nichtlinearen Mediums. Dazu wird in einem quantisierten Medium, z.B. Edelgasatomen, mittels kohärenter Strahlung eine Superposition von Quantenzuständen erzeugt. Diese Superposition resultiert in einer atomaren Kohärenz, welche direkt die nichtlineare Polarisierung des Mediums beeinflusst. Ein Frequenzkonversionsprozess in einem derart präparierten Medium erfolgt dann mit der höchstmöglichen Effizienz [6,7,8,9,10,11]. Zur Präparation stehen diverse diabatische und adiabatische Techniken wie π -Pulse [57], *coherent population return* (CPR) [11,57,58,59,60], elektromagnetisch induzierte Transparenz (EIT) [12,13,61], *rapid adiabatic passage* (RAP) [15], *stimulated raman adiabatic passage* (STIRAP) [15] oder *stark-chirped rapid adiabatic passage* (SCRAP) [14,15,16] zu Verfügung. Adiabatische Techniken bieten dabei den Vorteil einer hohen Stabilität gegenüber Fluktuationen in den experimentellen Parametern und einer langsamen zeitlichen Variation der präparierten atomaren Kohärenz.

Die Technik der Frequenzkonversion bei maximaler Kohärenz wurde bereits mehrfach experimentell realisiert [56,62,63,64,65,67,68,69,70,71,72]. Das Ziel in diesem Teil der Arbeit ist die Kombination der kohärenten Präparation des Mediums mit (ns) Laserpulsen und der Frequenzkonversion von (ps) Laserpulsen in den tiefen VUV-Spektralbereich. Dazu werden Xenon-Atome mittels (ns) Pump-Laserpulsen und CPR zunächst in einem transienten Zustand maximaler atomarer Kohärenz präpariert. Die (ps) Probe-Laserpulse wechselwirken dann mit den präparierten Xenon-Atomen und werden effizient in den tiefen VUV-Spektralbereich konvertiert. Dieser Prozess kann als Summenfrequenzmischung aus zwei Pump-Laserphotonen und einem Probe-Laserphoton verstanden werden, wobei der Konversionsprozess durch die überhöhte nichtlineare Polarisierung im kohärent getriebenen Medium vermittelt wird. Eine Variation der zeitlichen Verzögerung von (ns) Pump- und (ps) Probe-Laserpuls ermöglicht weiterhin die zeitaufgelöste Messung der Entwicklung der atomaren Kohärenz im Medium.

In den Abschnitten 3.1 und 3.2 werden zunächst die Grundlagen für eine quantenmechanische Beschreibung atomarer Systeme eingeführt und Techniken zur gezielten Manipulation der Dynamik solcher Quantensystemen und der Präparation einer atomaren Kohärenz erläutert. Anschließend wird in Abschnitt 3.3 die Frequenzkonversion im Falle maximaler Kohärenz diskutiert. In Abschnitt 3.4 und 3.5 werden Experimente zur effizienten Frequenzkonversion von (ps) Laserpulsen in den tiefen VUV-Spektralbereich dargestellt. In Abschnitt 3.6 wird eine Möglichkeit zur Erzeugung breitbandiger Spektren im VUV-Spektralbereich vorgestellt. Solche Spektren sind von besonderem Interesse bei der Erzeugung von Laserpulsen mit einer Pulsdauer von weniger als einer Femtosekunde.

3.1. Semiklassische Beschreibung von Frequenzkonversionsprozessen

In Kapitel 2 wurde die induzierte nichtlineare Polarisierung unter der Annahme diskutiert, dass kein Besetzungstransfer im Medium erfolgt. In diesem Fall lässt sich die durch ein externes elektromagnetisches Feld im Medium induzierte Polarisierung durch eine Reihenentwicklung über das einfallende elektromagnetische Feld ausdrücken. Im Falle starker resonanter Kopplungen erfolgt jedoch Besetzungstransfer im Medium und die Berechnung der Polarisierung sowie die Beschreibung des Frequenzkonversionsprozesses müssen quantenmechanisch erfolgen. Dabei genügt es auf Grund der typischerweise hohen Intensitäten (d.h. großer Photonenzahlen) sämtliche elektromagnetischen Felder klassisch zu behandeln.

In der Quantenmechanik ist die Polarisierung des Mediums durch den Erwartungswert des Dipoloperators $\hat{\mu} = er$ gegeben

$$P = N \cdot \langle \Psi(t) | \hat{\mu} | \Psi(t) \rangle \quad (3.1)$$

Dabei ist N die atomare Dichte des Mediums und $|\Psi(t)\rangle$ die Gesamtwellenfunktion eines Atoms. Außerdem erfolgt die Betrachtung für isotrope Medien, wodurch sämtliche Vektoren zu Skalaren vereinfacht werden können. Die Wellenfunktion $|\Psi(t)\rangle$ ist eine Superposition aus den einzelnen gebundenen Zuständen $|n\rangle$, gewichtet mit den Wahrscheinlichkeitsamplituden $c_n(t)$ und einem Phasenfaktor $\exp(-i\zeta_n(t))$

$$|\Psi(t)\rangle = \sum_n c_n(t) e^{-i\zeta_n(t)} |n\rangle \quad (3.2)$$

Hierbei wird über alle Zustände des Systems summiert. Mit dieser Definition ergibt sich die Polarisierung zu

$$P = N \cdot \sum_{n,l} \langle n | er | l \rangle \cdot c_n^* c_l \cdot e^{-i(\zeta_l - \zeta_n)} \quad (3.3)$$

Durch geeignete Wahl der Phasen ergibt sich der letzte Term zu $\exp(-i\omega_{nl}t)$ mit ω_{nl} als der Übergangsfrequenz des atomaren Übergangs $|n\rangle \leftrightarrow |l\rangle$. Auf Grund der in Abschnitt 2.1.1 durchgeführten SVEA der Maxwellschen Propagationsgleichung (siehe Gleichung (2.4)) werden diese schnell oszillierenden Terme in der weiteren Diskussion nicht mehr berücksichtigt.

Im Falle eines monochromatischen elektromagnetischen Feldes kann davon ausgegangen werden, dass die Frequenz des elektromagnetischen Feldes resonant zu lediglich einem einzigen Übergang im Atom ist. Für nicht monochromatische Felder wird davon ausgegangen, dass jede Frequenzkomponente ω_x ebenfalls resonant zu nur einem einzelnen atomaren Übergang ist. Damit reduziert sich die Summe in (3.3) auf einen Term je Frequenzkomponente des elektromagnetischen Feldes. Die Maxwellsche Propagationsgleichung (2.6) ergibt sich für jede spektrale Komponente des elektromagnetischen Feldes zu

$$\frac{\partial}{\partial z} E_x(z, t') = i \frac{\omega_x}{2\epsilon_0 c} N \mu_{nl} \cdot c_n^* c_l \quad (3.4)$$

Für eine resonante Ankopplung des elektromagnetischen Feldes an das nichtlineare Medium wird die Propagation des Feldes durch die im Medium induzierte Kohärenz $\rho_{nl} = c_n^* c_l$ beeinflusst. Eine gezielte Manipulation der Kohärenz erlaubt folglich eine Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen innerhalb des Mediums. Für eine Steigerung der Konversionseffizienz ist es daher sinnvoll, das Medium in einem Zustand maximaler Kohärenz zu präparieren. Um geeignete Präparationstechniken zu identifizieren, wird im folgenden Abschnitt die Wechselwirkung von elektromagnetischen Feldern mit Materie genauer diskutiert.

3.2. Kohärente Wechselwirkung von Licht und Materie

Dieser Abschnitt diskutiert die Wechselwirkung eines klassischen kohärenten Lichtfeldes mit einem quantenmechanischen System. Die Beschreibung der zeitlichen Entwicklung dieses Systems erfolgt dabei im Rahmen der Schrödingergleichung. Von besonderem Interesse für die späteren Experimente zur Frequenzkonversion ist dabei die Dynamik eines Zwei-Niveau-Systems im Falle von resonanter und nah-resonanter Anregung durch ein monochromatisches elektromagnetisches Feld.

3.2.1. Das kohärent getriebene Zwei-Niveau-System

Die Dynamik von atomaren Systemen mit gebundenen Zuständen wird im Allgemeinen durch die zeitabhängige Schrödingergleichung beschrieben

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi(t)\rangle = H(t) |\Psi(t)\rangle \quad (3.5)$$

Dabei ist Gesamtwellenfunktion $|\Psi(t)\rangle$ durch Gleichung (3.2) gegeben. $H(t)$ ist der Hamiltonoperator des Systems. In der folgenden Diskussion wird zunächst die Dynamik in einem idealen Zwei-Niveau-System erläutert. Anschließend wird dieses System Schritt für Schritt einem realistischen System angepasst.

Das reine Zwei-Niveau-System

Gegeben sei ein reines Zwei-Niveau-System, welches aus den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ besteht und mit einem elektromagnetischen Feld der Frequenz ω wechselwirkt (siehe Abbildung 36). Die Gesamtwellenfunktion $|\Psi(t)\rangle$ reduziert sich in diesem Fall auf zwei Terme. Der Hamiltonoperator $H(t) = H_0 + H_{ww}(t)$ setzt sich aus dem Operator H_0 des ungestörten Systems sowie dem Wechselwirkungsoperator $H_{ww}(t)$ zusammen. Bei der Wechselwirkung mit einem elektromagnetischen Feld \vec{E} in Dipolnäherung folgt der Wechselwirkungsoperator zu

$$H_{ww}(t) = -\vec{\mu} \vec{E}(t) \quad \text{mit} \quad \vec{\mu} = -e\vec{r} \quad (3.6)$$

Das elektromagnetische Feld sei linear polarisiert und monochromatisch

$$\vec{E}(t) = \frac{1}{2} \vec{E}_0 \left(E_0(t) \cdot e^{-i\omega t} + c.c. \right) \quad (3.7)$$

Durch geeignete Phasenwahl der Wellenfunktionen sowie des Energienullpunktes lässt sich die Schrödingergleichung (3.5) in das Diracsche Wechselwirkungsbild transformieren. Verwendet man zudem die Drehwellen-Näherung (*rotating wave approximation*, RWA) so ergibt sich die Schrödingergleichung in Matrixdarstellung zu [73]

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & \Omega(t) \\ \Omega(t) & 2\Delta \end{pmatrix}}_{H_{RWA}(t)} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} \quad (3.8)$$

Dabei ist $\Omega(t) = \mu_{12}E_0(t)/\hbar$ die Rabifrequenz mit dem Dipolübergangsmatrixelement μ_{12} und $\Delta = \omega_{12} - \omega$ die Verstimmung der Frequenz ω des elektromagnetischen Feldes von der Resonanzfrequenz $\omega_{12} = \omega_2 - \omega_1$. Für $\Delta \leq \Omega$ erfolgt typischerweise Besetzungstransfer zwischen den beiden Zuständen, weshalb diese Kopplung im Folgenden als nah-resonant bezeichnet wird.

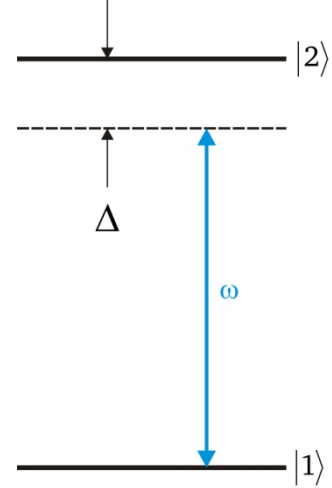


Abbildung 36: Schematische Darstellung eines nah-resonant gekoppelten Zwei-Niveau-System

Das erweiterte Zwei-Niveau-System

Das bisher betrachtete reine Zwei-Niveau-System wird jetzt um eine unbestimmte Anzahl von nicht-resonanten Zuständen $|m\rangle$ erweitert (siehe Abbildung 37). Die Beschreibung der Kopplung zwischen den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ bleibt dabei unverändert. Allerdings treten jetzt noch zusätzliche Kopplungen $|1\rangle \leftrightarrow |m\rangle$ und $|2\rangle \leftrightarrow |m\rangle$ auf. Die Frequenz des elektromagnetischen Feldes ist weit verstimmt von den Übergangsfrequenzen ω_{m1} bzw. ω_{m2} und es erfolgt kein Besetzungstransfer zwischen den Zuständen. Unter diesen Bedingungen tritt der quadratischen Starkeffekt auf, d.h. die Energie $\hbar\omega_n$ der Zustände des Zwei-Niveau-Systems erfährt eine dynamische Starkverschiebung $\hbar S_n(t)$ mit [73]

$$S_n(t) = -\sum_m \frac{|\Omega_{nm}(t)|^2}{2\Delta_{nm}} = -\sum_m \frac{|\mu_{nm}|^2}{2\hbar^2(\omega_m - \omega_n - \omega)} \cdot |E_0(t)|^2 \quad (3.9)$$

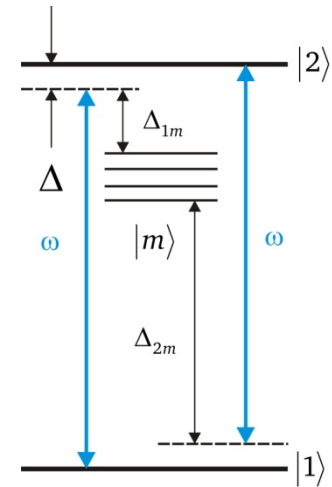


Abbildung 37: Schematische Darstellung von nicht-resonanten Kopplungen der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$ und an die Zustände $|m\rangle$

Dabei ist $\Omega_{nm}(t) = \mu_{nm}E_0(t)/\hbar$ die Rabifrequenz auf dem Übergang $|n\rangle \leftrightarrow |m\rangle$ und $\Delta_{nm} = \omega_m - \omega_n - \omega$ die Verstimmung der Frequenz des elektromagnetischen Feldes von der entsprechenden Resonanzfrequenz des Übergangs. Kopplungen an das Kontinuum werden hier vernachlässigt, da die entsprechenden Übergangsmomente typischerweise gering sind im Vergleich zu Kopplungen zwischen

gebundenen Zuständen. Mit der effektiven Starkverschiebung $S_{eff}(t) = S_2(t) - S_1(t)$ ergibt sich die Schrödingergleichung dann zu [73]

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & \Omega(t) \\ \Omega(t) & 2\Delta + 2S_{eff}(t) \end{pmatrix}}_{H_{RWA}(t)} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} \quad (3.10)$$

Das erweiterte Zwei-Niveau-System mit Zwei-Photonen-Kopplung

In einem, um nicht-resonante Zustände $|m\rangle$, erweiterten Zwei-Niveau-System treten neben Ein-Photonen-Kopplungen auch Zwei- und Mehr-Photonen-Kopplungen auf. Die im experimentellen Teil verwendete Präparationstechnik verwendet eine Zwei-Photonen-Kopplung zwischen den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$. Dies bedeutet, dass der Zustand $|1\rangle$ mittels zweier Photonen resonant an den Zustand $|2\rangle$ gekoppelt wird (siehe Abbildung 38). Diese Kopplung erfolgt durch nicht-resonante Ein-Photonen-Kopplungen $|1\rangle \leftrightarrow |m\rangle$ und $|m\rangle \leftrightarrow |2\rangle$. Entsprechend den Auswahlregeln für optische Dipolübergänge sind diese Kopplungen erlaubt und die entsprechenden Dipolmatrixübergangselemente μ_{1m} und μ_{m2} sind von Null verschieden. Die direkte Ein-Photonen-Kopplung $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ ist hingegen dipolverboten und es gilt $\mu_{12} = 0$. Gleiches gilt für Ein-Photonen-Übergänge zwischen den nicht-resonanten Zuständen $|m\rangle$.

Die Besetzungsdynamik in diesem System ist wieder durch die Schrödingergleichung gegeben. Auf Grund der nicht-resonanten Kopplung der Zustände $|m\rangle$ lassen sich diese aus der Schrödingergleichung eliminieren [57] und man erhält ein effektives 2-Niveau-System. Nach Transformation in das Diracsche Wechselwirkungsbild und Anwendung der RWA ergibt sich die Schrödingergleichung für dieses System zu

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2} \underbrace{\begin{pmatrix} 0 & \Omega_{2P}(t) \\ \Omega_{2P}(t) & 2\Delta_{2P} + 2S_{eff}(t) \end{pmatrix}}_{H_{RWA}^{2P}(t)} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \end{pmatrix} \quad (3.11)$$

Dabei ist $\Delta_{2P} = \omega_{12} - 2\omega$ die Zwei-Photonen-Verstimmung der Frequenz des elektromagnetischen Feldes von der Übergangsfrequenz und $S_{eff}(t)$ die zuvor definierte effektive Starkverschiebung der Zustände $|1\rangle$ und $|2\rangle$. $\Omega_{2P}(t)$ ist die Zwei-Photonen-Rabifrequenz [57] zwischen diesen beiden Zuständen

$$\Omega_{2P}(t) = \frac{1}{4} \sum_m \frac{\mu_{1m} \mu_{m2}}{\hbar^2 \Delta_{1m}} \cdot E_0^2(t) = \frac{\mu_{12}^{eff}}{\hbar} \cdot E_0^2(t) \quad (3.12)$$

Kopplungen an das Kontinuum werden auch hier auf Grund der geringen Kopplungsstärken vernachlässigt.

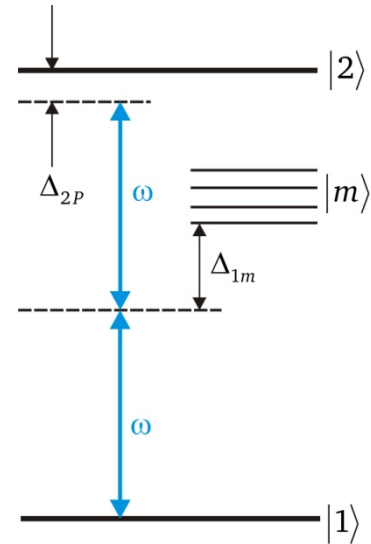


Abbildung 38: Schematische Darstellung einer Zwei-Photonen-Kopplung in einem 2-Niveau-System mit weiteren nicht-resonanten Zuständen

Gleichung (3.11) ist nahezu identisch mit der Schrödingergleichung (3.10) für das erweiterte Zwei-Niveau-System mit einer Ein-Photonen-Kopplung zwischen den beiden Zuständen. Lediglich die Ein-Photonen-Rabifrequenz $\Omega(t) \propto E_0(t)$ geht über in die Zwei-Photonen-Rabifrequenz $\Omega_{2P}(t) \propto E_0^2(t) \propto I_0(t)$, welche proportional zur Intensität anstatt zur elektromagnetischen Feldstärke ist.

3.2.2. Adiabatische Zustände und adiabatische Entwicklung

Die Eigenzustände des effektiven Zwei-Niveau-Systems mit Zwei-Photonen-Kopplung sind durch die Eigenvektoren des Hamiltonoperators $H_{RWA}^{2P}(t)$ gegeben. Im ungestörten Fall ($H_{RWA}^{2P}(t) = H_0$) sind dies die Basisfunktionen $|1\rangle$ und $|2\rangle$, welche auch als diabatische Zustände bezeichnet werden. Im Falle einer starken Wechselwirkung des Systems mit einem externen elektromagnetischen Feld erfolgt eine Kopplung der diabatischen Zustände. Verläuft die zeitliche Änderung der Kopplung auf einer Zeitskala die groß gegenüber der inversen Rabifrequenz Ω_{2P}^{-1} ist, so spricht man von einer adiabatischen Entwicklung des Systems [57]. Dann ist eine Beschreibung der Dynamik des Systems im stationären Eigensystem des Hamiltonoperators $H_{RWA}^{2P}(t)$ sinnvoll.

Die adiabatischen Eigenzustände

Die Eigenzustände des Systems im Falle einer adiabatischen Entwicklung ergeben sich als die instantanen Eigenvektoren $|a^\pm(t)\rangle$ des Hamiltonoperators $H_{RWA}^{2P}(t)$ zum Zeitpunkt t [17]

$$|a^\pm(t)\rangle = \cos \Theta^\pm |1\rangle + \sin \Theta^\pm |2\rangle \quad (3.13)$$

mit den Mischungswinkeln

$$\tan \Theta^\pm = \frac{\Delta_{2P}}{\Omega_{2P}} \pm \sqrt{\frac{\Delta_{2P}^2}{|\Omega_{2P}|^2} + 1} \quad (3.14)$$

sowie den Eigenwerten

$$\hbar \omega_\pm = \frac{\hbar}{2} \left(\Delta_{2P}(t) \pm \sqrt{\Delta_{2P}^2(t) + \Omega_{2P}^2(t)} \right) \quad (3.15)$$

Für die Mischungswinkel gilt $\Theta^+ = \Theta^- + \pi/2$, so dass die adiabatischen Eigenzustände wiederum ein orthonormiertes Basissystem bilden. Die Besetzungswahrscheinlichkeit der diabatischen Zustände ist zu jedem Zeitpunkt als die Projektion $|\langle n|a^\pm(t)\rangle|^2$ der adiabatischen Zustände auf die diabatische Basis gegeben. Die Gesamtwellenfunktion des Systems ist durch eine Superposition der adiabatischen Zustände

$$\Psi(t) = a^+ |a^+(t)\rangle + a^- |a^-(t)\rangle \quad (3.16)$$

mit den Koeffizienten $a^\pm = 1/\sqrt{2} \cdot \exp(-i/\hbar \cdot \omega_\pm t)$ gegeben.

Adiabatische Entwicklung

Eine adiabatische Entwicklung eines Systems bedeutet, dass es zu keiner Kopplung zwischen den adiabatischen Eigenzuständen kommt. Diese Kopplung ist durch die nicht-Diagonalelemente des Hamiltonoperators in der adiabatischen Basis gegeben. Dieser Hamiltonoperator ergibt sich durch Basistransformation von $H_{RWA}^{2P}(t)$ zu

$$H_{ad}(t) = \begin{pmatrix} \hbar\omega_+ & i\hbar\dot{\Theta}^+(t) \\ -i\hbar\dot{\Theta}^-(t) & \hbar\omega_- \end{pmatrix} \quad (3.17)$$

Solange die Bedingung $|\dot{\Theta}^\pm| \ll |\omega_+ - \omega_-|$ [57] erfüllt ist, kommt es zu keiner Kopplung zwischen den adiabatischen Zuständen $|a^\pm(t)\rangle$. Im Falle einer konstanten Wechselwirkung $\Omega_{2P}(t) = \Omega_{2P} \neq 0$ gilt $|\dot{\Theta}^\pm| = 0$ und die Bedingung für adiabatische Entwicklung ist trivial erfüllt.

Im Allgemeinen ist es das Ziel, die Dynamik des Systems gezielt durch Variation von Rabifrequenz und Verstimmung zu steuern. Unter Berücksichtigung der Definition der Mischungswinkel und der Eigenwerte lässt sich die Adiabatiebedingung formulieren als

$$\left| \frac{\dot{\Delta}\Omega - \Delta\dot{\Omega}}{(\Delta^2 + \Omega^2)} \right| \ll \sqrt{\Delta^2 + \Omega^2} \quad (3.18)$$

Der Index $2P$ zur Verdeutlichung der Zwei-Photonen-Kopplung sowie die explizite Angabe der Zeitabhängigkeit von Rabifrequenz und Verstimmung werden hier und im Folgenden aus Gründen der Übersichtlichkeit weggelassen. Solange die Bedingung (3.18) erfüllt ist, erfolgt keine Kopplung zwischen den adiabatischen Zuständen. Ist das System zu Beginn der Wechselwirkung in einem adiabatischen Zustand präpariert, so verbleibt es während der gesamten Wechselwirkung in diesem.

3.2.3. Dichtematrixformalismus

Der bisher verwendete Schrödinger-Formalismus ist im Allgemeinen nicht geeignet, um quantenmechanische Systeme mit Verlustkanälen (spontaner Zerfall, Ionisation) analytisch zu beschreiben. In diesem Fall ist es sinnvoll zum Dichtematrix-Formalismus zu wechseln und die Dynamik des Systems durch die Liouville-Gleichung zu beschreiben

$$i\hbar\dot{\rho} = [H, \rho] - i\hbar\tilde{\rho} \quad (3.19)$$

Dabei ist ρ die Dichtematrix mit den Komponenten $\rho_{ij} = c_i^* c_j$ und c_i, c_j die Wahrscheinlichkeitsamplituden der Zustände $|i\rangle$ und $|j\rangle$. Die Zerfallsmatrix $\tilde{\rho}$ ist definiert durch

$$\tilde{\rho}_{ij} = \left[\frac{1}{2}(\gamma_i + \gamma_j) + \gamma_{ij} \right] \rho_{ij} \quad (3.20)$$

Die Terme γ_i und γ_j beschreiben Verluste durch spontanen Zerfall und Ionisation aus den jeweiligen Zuständen. Der Term γ_{ij} berücksichtigt phasenstörende Effekte wie z.B. Stöße zwischen den Atomen. Man erkennt leicht, dass sämtliche Verluste direkt zu einem Abbau der Kohärenz ρ_{ij} mit $i \neq j$ führen. Sind die Verluste folglich zu groß, so erfolgt keine stabile kohärente Präparation des Mediums. Die Liouville-Gleichung wird für Simulationen im Rahmen dieser Arbeit auf Basis eines Runge-Kutta-Verfahrens vierter Ordnung numerisch gelöst.

3.2.4. Kohärente Präparation im Zwei-Niveau-System

Im Nachfolgenden wird die Besetzungsdynamik eines kohärent getriebenen, effektiven Zwei-Niveau-Systems diskutiert. Die Kopplung der beiden Zustände des Systems erfolgt dabei durch eine Zwei-Photonen-Kopplung eines externen elektromagnetischen Feldes. Die Besetzung der Zustände ist zu jedem Zeitpunkt t durch die Diagonalelemente der Dichtematrix $\rho_{ii} = |c_j(t)|^2$ gegeben. Die Nichtdiagonalelemente $\rho_{ij} = c_i^* c_j$ sind die zwischen den beiden Zuständen präparierte Kohärenz. In Abhängigkeit von Rabifrequenz und Verstimmung des elektromagnetischen Feldes ist eine gänzlich unterschiedliche Dynamik der Besetzung sowie der Kohärenz im Zwei-Niveau-System zu beobachten.

Resonante Anregung

In allen nachfolgenden Betrachtungen wird eine zeitlich gaußförmig variierende Rabifrequenz $\Omega(t) = \Omega_0 \cdot \exp(-[t - t_0]^2/T^2)$ mit der Pulsdauer T angenommen. Vor Beginn der Wechselwirkung befindet die gesamte Besetzung des Zwei-Niveau-Systems im Grundzustand. Die Frequenz ω des elektromagnetischen Feldes sei Zwei-Photonen-resonant zur Übergangsfrequenz ω_{12} des Zwei-Niveau-Systems abgestimmt ($\Delta = 0$). In Abbildung 39 (obere Reihe) ist das Ergebnis einer numerischen Simulation der Besetzungsdynamik dargestellt. Die Besetzung oszilliert während der Wechselwirkung zwischen dem Grundzustand $|1\rangle$ (rote Kurve) und dem angeregten Zustand $|2\rangle$ (grüne Kurve), d.h. das System entwickelt sich diabatisch. Die Oszillationsperiode ist abhängig von der maximalen Rabifrequenz Ω_0 auf dem Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$. Am Ende der Wechselwirkung verbleibt ein gewisser Teil der Besetzung, abhängig von der Pulsfläche $A = \int \Omega(t)dt$, im angeregten Zustand. Zeitgleich mit der Besetzung oszilliert auch die präparierte Kohärenz $|\rho_{12}| = |c_1^* c_2|$, siehe Abbildung 39 (untere Reihe). Auf Grund des unvollständigen Besetzungstrfers verbleibt nach Ende der Wechselwirkung ebenfalls eine Kohärenz im System.

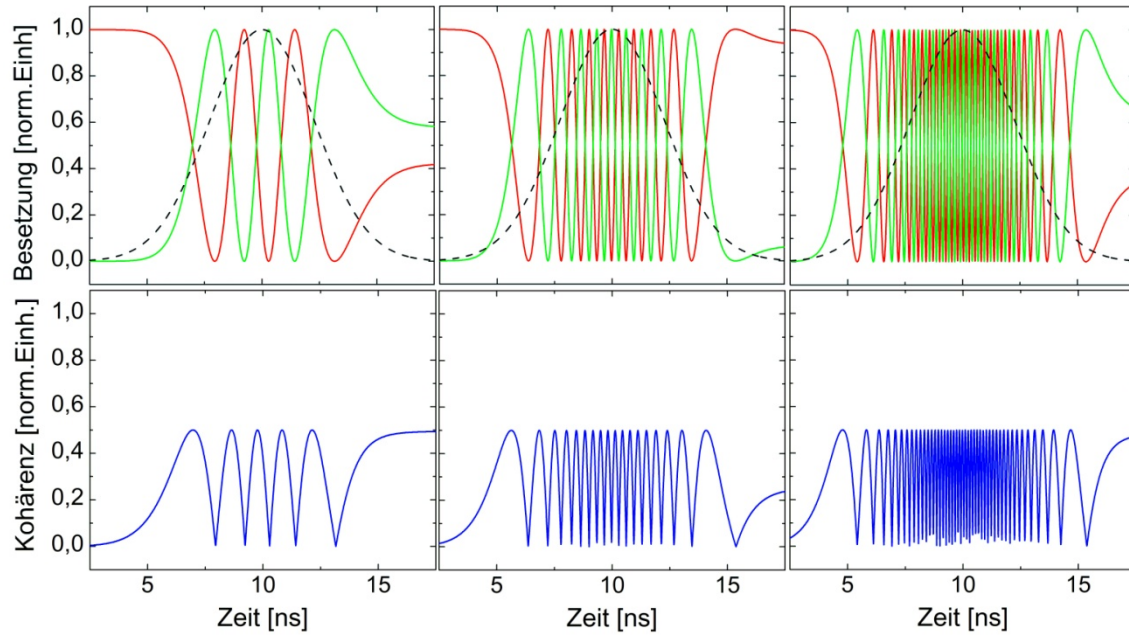


Abbildung 39: Ergebnis der numerischen Simulation der Besetzungen (obere Reihe) im Grundzustand (rote Kurve) und im angeregten Zustand (grüne Kurve) sowie der Kohärenz $|\rho_{12}|$ (untere Reihe) im Zwei-Niveau-System bei resonanter Zwei-Photonen-Anregung ($\Delta = 0 \text{ ns}^{-1}$). In der oberen Reihe ist schwarz gestrichelt der zeitliche Verlauf der Rabifrequenz skizziert. Die maximale Rabifrequenz Ω_0 steigt von links nach rechts (3 ns^{-1} , 10 ns^{-1} und 25 ns^{-1})

Nicht-resonante Anregung

Verstimmt man die Frequenz des elektromagnetischen Feldes derart von der Resonanzfrequenz, dass die Zwei-Photonen-Verstimmung Δ der Bedingung $\Omega_0 > \Delta > \Gamma_2$ genügt, so ergibt sich eine gänzlich unterschiedliche Dynamik des Systems. Dabei ist $\Gamma_2 = \tau_2^{-1}$ die spontane Zerfallsrate des angeregten Zustandes mit der natürlichen Lebensdauer τ_2 . Ohne Beschränkung der Allgemeinheit werden im Folgenden lediglich positive Verstimmungen $\Delta > 0$ betrachtet. Abbildung 40 zeigt das Ergebnis einer numerischen Simulation der zeitlichen Entwicklung des Systems bei einer Verstimmung $\Delta = 4 \text{ ns}^{-1}$ für die gleichen Rabifrequenzen wie im Falle resonanter Anregung. Es treten keine Oszillationen mehr auf. Stattdessen ergibt sich eine gleichmäßige Entwicklung der Besetzung (obere Reihe; Grundzustand: rote Kurve, angeregter Zustand: grüne Kurve) sowie der Kohärenz (untere Reihe). Unabhängig von der maximalen Rabifrequenz Ω_0 befindet sich am Ende der Wechselwirkung keinerlei Besetzung im angeregten Zustand. Während der Wechselwirkung wird im Gegensatz zur resonanten Anregung nur ein Teil der Besetzung in den angeregten Zustand transferiert. Für die Kohärenz lässt sich die Ausbildung eines Plateaus bei steigender Rabifrequenz beobachten.

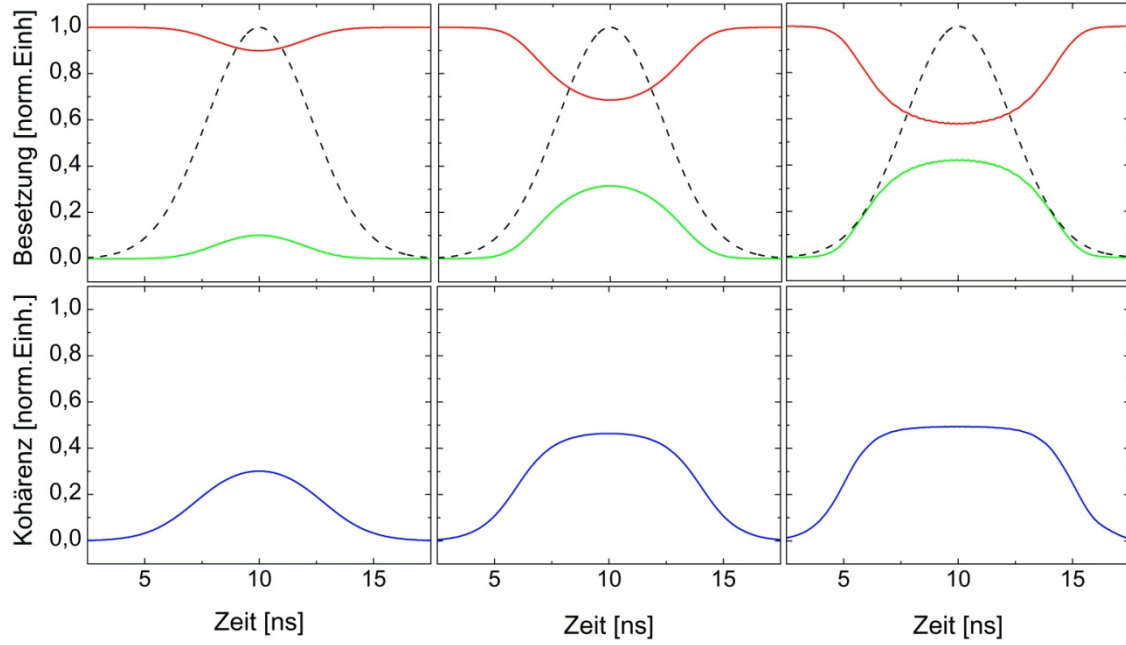


Abbildung 40: Ergebnis der numerische Simulation der Besetzungen (obere Reihe) im Grundzustand (rote Kurve) und im angeregten Zustand (grüne Kurve) sowie der Kohärenz $|\rho_{12}|$ (untere Reihe) im 2-Niveau-System bei nah-resonanter Zwei-Photonen-Anregung ($\Delta = 4 \text{ ns}^{-1}$). In der oberen Reihe ist schwarz gestrichelt der zeitliche Verlauf der Rabifrequenz skizziert. Die maximale Rabifrequenz Ω_0 steigt von links nach rechts (3 ns^{-1} , 10 ns^{-1} und 25 ns^{-1})

Zum Verständnis der beschriebenen Dynamik des nah-resonant gekoppelten Zwei-Niveau-Systems ist es notwendig, die zeitliche Entwicklung der adiabatischen Eigenzustände $|a^\pm(t)\rangle$ genauer zu betrachten. Aus der Definition der Mischungswinkel (3.14) folgen unmittelbar aus Gleichung (3.13) die adiabatischen Eigenzustände des Systems vor und nach der Wechselwirkung ($t \rightarrow \pm\infty$):

$$\begin{aligned} \Theta^+(t = \pm\infty) &= \frac{\pi}{2} \quad \Rightarrow \quad |a^+(t = \pm\infty)\rangle = |2\rangle \\ \Theta^-(t = \pm\infty) &= 0 \quad \Rightarrow \quad |a^-(t = \pm\infty)\rangle = |1\rangle \end{aligned} \quad (3.21)$$

Folglich ist der Zustand $|a^-\rangle$ bei positiven Verstimmungen vor und nach der Wechselwirkung identisch mit dem Grundzustand $|1\rangle$. Ist während der Wechselwirkung die Adiabasiebedingung (3.18) erfüllt, so wird die Dynamik des Systems durch die zeitliche Entwicklung des adiabatischen Zustandes $|a^-\rangle$ beschrieben.

Mit steigender Rabifrequenz $\Omega(t < t_0)$ wächst der Mischungswinkel Θ^- und Besetzung wird aus dem Grundzustand in den angeregten Zustand transferiert. Bei fallender Rabifrequenz $\Omega(t > t_0)$ sinkt der Mischungswinkel wieder und die Besetzung fließt zurück in den Grundzustand. Dieser Prozess wird als *coherent population return* (CPR) bezeichnet. Das System entwickelt sich in diesem Fall adiabatisch. Für hinreichend große Rabifrequenzen Ω_0 strebt der Mischungswinkel

kel asymptotisch gegen einen Maximalwert von $\pi/2$. Der maximale Besetzungstransfer während der Wechselwirkung beträgt dann 50%, siehe auch Abbildung 40 (obere Reihe). Für die transiente Kohärenz $|\rho_{12}| = |c_1^* c_2|$ zwischen den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$ folgt unter den gegebenen Bedingungen aus Gleichung (3.13)

$$|\rho_{12}| = \cos \Theta^- \cdot \sin \Theta^- \quad (3.22)$$

Die Kohärenz erreicht ihren Maximalwert von $|\rho_{12}^{max}| = 0.5$ ebenfalls für einen Mischungswinkel $\Theta^- = \pi/2$, d.h. einer Besetzungsverteilung $|c_1|^2 = |c_2|^2 = 0.5$. Für hinreichend große Rabi-Frequenzen ist folglich die Präparation einer maximalen Kohärenz mittels CPR möglich. Analoge Überlegungen gelten für negative Verstimmungen $\Delta < 0$ und den adiabatischen Eigenzustand $|a^+\rangle$.

3.3. Vierwellenmischung bei maximaler Kohärenz

Im vorangegangenen Abschnitt wurde die Präparation einer atomaren Kohärenz in einem Zwei-Niveau-System diskutiert. Im Folgenden wird die Frequenzkonversion in einem kohärent präparierten Medium erläutert. Die Darstellung folgt dabei den Ergebnissen in [17,24].

Zur Erzeugung von Strahlung im VUV-Spektralbereich ist insbesondere der Prozess der Summenfrequenzerzeugung von Interesse. Abbildung 41 zeigt die schematische Darstellung des zur Vierwellenmischung bei gleichzeitiger kohärenter Präparation des Mediums verwendeten Kopplungsschemas. Der Grundzustand $|1\rangle$ und der angeregte Zustand $|2\rangle$ werden mittels zweier Pump-Laserphotonen der Frequenz ω_p gekoppelt. Die Verstimmung der Pump-Laserfrequenz von der Zwei-Photonen-Resonanz des Übergangs $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$ ist dabei durch die Zwei-Photonen-Verstimmung $\Delta_p = \omega_{12} - 2\omega_p$ gegeben. Die Kopplung durch den Pump-Laser erlaubt die Präparation einer Kohärenz. Ein Photon des zusätzlich eingestrahlten Probe-Lasers mit der Frequenz ω_{pr} wechselwirkt mit dem kohärent präparierten System und erzeugt dabei VUV-Strahlung der Frequenz ω_{VUV} . Die Probe-Laserfrequenz sei dabei nicht resonant zu weiteren angeregten Zuständen $|3\rangle$ des Systems (Verstimmung $\Delta_{pr} = \omega_{23} - \omega_{pr}$).

Das vorgestellte Kopplungsschema ermöglicht es zwei unabhängige Strahlungsquellen für Pump- und Probe-Laserstrahlung zu verwenden. Zur Präparation der Kohärenz kann ein langer Pump-Laserpuls mit schmaler Bandbreite eingesetzt werden, der eine gezielte adiabatische Entwicklung des Sys-

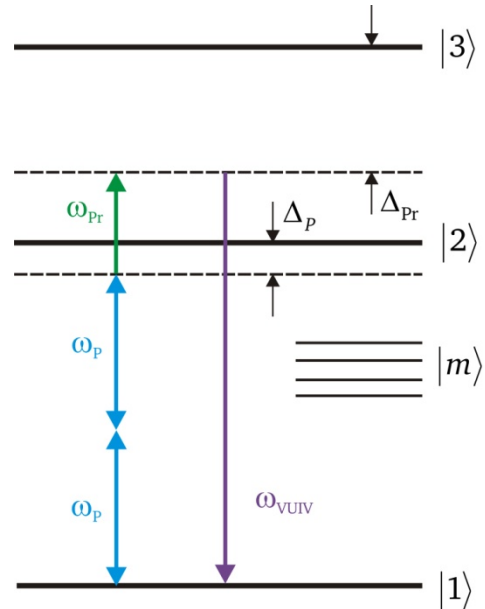


Abbildung 41: Kopplungsschema zur Vierwellenmischung bei maximaler Kohärenz.

tems und somit die Präparation einer zeitlich langsam variierenden Kohärenz erlaubt. Die Probe-Laserstrahlung unterliegt keinerlei derartigen Bedingungen und kann somit auch durch einen ultra-kurzen Laserpuls oder Strahlung mit großer spektraler Bandbreite realisiert werden. Somit kann eine effiziente Konversion der Probe-Laserstrahlung unabhängig von deren Eigenschaften in den VUV-Spektralbereich erzielt werden.

Der Pump-Laser transferiert auf Grund der nah-resonanten bis resonanten Kopplung Besetzung zwischen den Zuständen $|1\rangle$ und $|2\rangle$. Aus diesem Grund muss die mathematische Beschreibung der Frequenzkonversion quantenmechanisch erfolgen. In diesem Fall lautet die Maxwell'sche Propagationsgleichung im Medium für eine einzelne Feldkomponenten $E_x(t)$ (siehe Abschnitt 3.1)

$$\frac{\partial}{\partial z} E_x(z, t') = i \frac{\omega_x}{2\epsilon_0 c} N \mu_{nl} \cdot c_n^* c_l \quad (3.23)$$

Das im Medium propagierende elektromagnetische Feld ist für die oben beschriebene Summenfrequenzmischung gegeben durch

$$E(t) = \sum_{x=P,Pr,VUV} E_x(t) = E_p(t) + E_{Pr}(t) + E_{VUV}(t) \quad (3.24)$$

wobei jede der Feldkomponenten E_x mit der Frequenz ω_x entsprechend Gleichung (2.2) definiert ist. Die Wechselwirkung des atomaren Systems mit dem elektromagnetischen Feld ist in diesem Fall gegeben durch den Zwei-Photonen-Prozess der Pump-Laserstrahlung sowie den Ein-Photonen-Prozessen von Probe-Laserstrahlung und erzeugter VUV-Strahlung. Der Hamiltonoperator des Systems im Diracschen Wechselwirkungsbild nach Anwendung der RWA ergibt sich zu

$$H = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_p & \Omega_{VUV} \\ \Omega_p & 2\Delta_p & \Omega_{Pr} \\ \Omega_{VUV} & \Omega_{Pr} & 2(\Delta_p + \Delta_{Pr}) \end{pmatrix} \quad (3.25)$$

Ω_p ist die vom Pump-Laser induzierte Zwei-Photonen-Rabifrequenz auf dem Übergang $|1\rangle \leftrightarrow |2\rangle$, Ω_{Pr} die vom Probe-Laser induzierte Rabifrequenz auf dem Ein-Photonen-Übergang $|2\rangle \leftrightarrow |3\rangle$ und Ω_{VUV} die aus der VUV-Strahlung resultierende Rabifrequenz auf dem Übergang $|3\rangle \leftrightarrow |1\rangle$. Aus der Schrödinger-Gleichung (3.5) ergeben sich damit für das effektive Drei-Niveau-System drei gekoppelte Differentialgleichungen

$$\begin{aligned} \dot{c}_1 &= -\frac{i}{2} [\Omega_p c_2 + \Omega_{VUV} c_3] \\ \dot{c}_2 &= -\frac{i}{2} [\Omega_p c_1 + 2\Delta_p c_2 + \Omega_{Pr} c_3] \\ \dot{c}_3 &= -\frac{i}{2} [\Omega_{VUV} c_1 + \Omega_{Pr} c_2 + 2(\Delta_p + \Delta_{Pr}) c_3] \end{aligned} \quad (3.26)$$

Die Probe-Laserfrequenz ist weit verstimmt von der Resonanzfrequenz ω_{23} und induziert damit keinen Besetzungstransfer in den Zustand $|3\rangle$. Daher kann dieser adiabatisch eliminiert werden, d.h. $\dot{c}_3 \approx 0$. Des weiteren kann angenommen werden, dass die Pump-Laserverstimmung klein gegenüber der Probe-Laserverstimmung ist, $|\Delta_P| \ll |\Delta_{Pr}|$, woraus $|\Delta_P + \Delta_{Pr}| \approx \Delta_{Pr}$ folgt. Aus Gleichung (3.26) ergibt sich unter diesen Bedingungen die Wahrscheinlichkeitsamplitude c_3 zu

$$c_3 = -\frac{\Omega_{VUV}c_1 + \Omega_{Pr}c_2}{2\Delta_{Pr}} \quad (3.27)$$

Mit dem elektromagnetischen Feld (3.24) und Gleichung (3.27) ergibt sich aus der Maxwellschen Propagationsgleichung (3.4)

$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial z} E_{Pr}(t) &= \frac{iN}{2\varepsilon_0 c \hbar} \left[\frac{\mu_{23}^2 \omega_{Pr}}{2\Delta_{Pr}} |c_2|^2 E_{Pr} + \frac{\mu_{23} \mu_{31} \omega_{Pr}}{2\Delta_{Pr}} \rho_{12} E_{VUV} \right] \\ \frac{\partial}{\partial z} E_{VUV}(t) &= \frac{iN}{2\varepsilon_0 c \hbar} \left[\frac{\mu_{31}^2 \omega_{VUV}}{2\Delta_{Pr}} |c_1|^2 E_{VUV} + \frac{\mu_{23} \mu_{31} \omega_{VUV}}{2\Delta_{Pr}} \rho_{12} E_{Pr} \right] \end{aligned} \quad (3.28)$$

Der Abbau des elektromagnetischen Feldes des Pump-Lasers wird dabei vernachlässigt, d.h. $\partial/\partial z (E_P) \approx 0$. Typischerweise ist die Anzahl der vorhandenen Pump-Laserphotonen groß gegenüber der Anzahl erzeugter VUV-Photonen, weshalb die Pump-Laserintensität durch den Frequenzkonversionsprozess nicht nennenswert abgebaut wird. Der Einfluss der Pump-Laserstrahlung auf das System ist in den Gleichungen (3.28) dennoch über die Kohärenz $\rho_{12} = c_1^* c_2$ indirekt berücksichtigt.

Der jeweils erste Summand auf der linken Seite der Gleichungen (3.28) beschreibt die Wechselwirkung des Mediums mit dem entsprechenden Strahlungsfeld auf Grund von Dispersion und Absorption. Dies entspricht dem Einfluss der linearen Polarisation $P_{Pr}^{(1)} = \chi_{Pr}^{(1)} E_{Pr}$ bzw. $P_{VUV}^{(1)} = \chi_{VUV}^{(1)} E_{VUV}$ mit

$$\begin{aligned} \chi_{Pr}^{(1)} &= \frac{iN}{2\varepsilon_0 c \hbar} \cdot \frac{\mu_{23}^2 \omega_{Pr}}{2\Delta_{Pr}} |c_2|^2 \\ \chi_{VUV}^{(1)} &= \frac{iN}{2\varepsilon_0 c \hbar} \cdot \frac{\mu_{31}^2 \omega_{VUV}}{2\Delta_{Pr}} |c_1|^2 \end{aligned} \quad (3.29)$$

Der zweite Summand auf der rechten Seite von Gleichungen (3.28) entspricht der nichtlinearen Polarisation dritter Ordnung. Die Kohärenz ρ_{12} wird durch einen Zwei-Photonen-Prozess des Pump-Lasers präpariert. Dies bedeutet, die Kohärenz und somit die Polarisation dritter Ordnung oszilliert mit der Frequenz

$2\omega_p$. Zusätzlich induziert der Probe-Laser eine Polarisation, die mit der Frequenz ω_{pr} schwingt. Die Schwingungen der beiden induzierten Polarisationen überlagern sich phasengekoppelt, wodurch sich Schwebungsterme mit den Frequenzen $\omega_{VUV} = 2\omega_p \pm \omega_{pr}$ ausbilden. Im Falle von $\omega_{VUV} = 2\omega_p + \omega_{pr}$ ergibt sich gerade die durch Summenfrequenzmischung zweier Pump-Laserphotonen mit einem Probe-Laserphoton erzeugte VUV-Strahlung.

Der zweite Summand auf der linken Seite von Gleichung (3.28) zeigt, dass die erzeugte Feldstärke bzw. Intensität im VUV-Spektralbereich direkt von der im Medium präparierten Kohärenz abhängt. Eine Maximierung der Kohärenz bedeutet folglich eine Effizienzsteigerung des gesamten Konversionsprozesses. Die im Nachfolgenden beschriebene experimentelle Umsetzung des diskutierten Kopplungsschemas erfolgt wie bereits im zweiten Teil dieser Arbeit in einem dichten Atomstrahl aus Xenon-Atomen. Es wurde bereits gezeigt, dass in diesem Fall Phasenfehlanspassungen von Summenfrequenzmischprozessen auf Grund verschiedener Frequenzen der wechselwirkenden Strahlungen vernachlässigt werden können.

3.4. Experimentelle Realisierung

Für die experimentelle Umsetzung von Frequenzkonversionsprozessen in kohärent präparierten Medien wird wieder Xenon als Medium gewählt. Die Vorteile von Xenon bei der Erzeugung von VUV-Strahlung wurden bereits in Abschnitt 2.3 erläutert. Als Pump-Strahlung dient gepulste Laserstrahlung mit einer Pulsdauer von wenigen Nanosekunden. Mit diesen Laserpulsen können vergleichsweise einfach adiabatische Prozesse, wie sie zur Präparation einen stabilen Kohärenz notwendig sind, realisiert werden. Das Ziel dieser Arbeit ist die Erzeugung ultra-kurzer Laserpulse im VUV-Spektralbereich. Daher werden als Probe-Laserstrahlung die bereits im zweiten Teil der Arbeit verwendete (ps) Laserpulse eingesetzt.

3.4.1. Kopplungsschema und Wechselwirkungsparameter

Abbildung 42 zeigt einen Ausschnitt aus dem Termschema des Valenzelektrons im Xenon-Atom [46]. Der Grundzustand $5p^6\ ^1S_0$ und der angeregte Zustand $7p^2[1/2]_0$ (Lebensdauer 60 ns [75]) werden durch zwei Photonen des (ns) Pump-Laserpulses mit einer Wellenlänge von $\lambda_p = 225$ nm nah-resonant gekoppelt. Die Pump-Laserstrahlung treibt einen Zwei-Photonen-CPR-Prozess im Xenon-Atom und präpariert während der Pulsdauer des Pump-Laserpulses eine vorübergehende Kohärenz. Ein zusätzlicher (ps) Probe-Laserpuls bei einer Wellenlänge von $\lambda_{pr} = 540$ nm wird zeitlich koinzident mit dem Pump-Laserpuls eingestrahlt und erzeugt (ps) VUV-Signal-Strahlung bei einer Wellenlänge von $\lambda_{VUV} = 93$ nm.

Anhand von Gleichung (3.12) kann mit den in [75] angegebenen Daten die durch die Pump-Laserstrahlung induzierte Zwei-Photonen-Rabifrequenz berechnet werden:

$$\Omega_p[\text{ns}^{-1}] = 16.7 \cdot I_p[\text{GW}/\text{cm}^2] \quad (3.30)$$

Für die Berechnung wurden die Zwischenzustände $6s^2[3/2]_1$, $6s^2[1/2]_1$, $5d^2[1/2]_1$, $5d^2[3/2]_1$ und $7s^2[3/2]_1$ berücksichtigt.

Sowohl der Pump-Laser als auch der Probe-Laser können die angeregten Xenon-Atome direkt ionisieren. Die Ionisationsraten berechnen sich mit den in [76] angegebenen Photoionisationsquerschnitten von $\sigma_p^{7p} \approx 0.85 \text{ MB}$ bzw. $\sigma_{pr}^{7p} \approx 10 \text{ MB}$ zu

$$\begin{aligned}\Gamma_p[\text{ns}^{-1}] &= 6 \cdot I_p[\text{GW}/\text{cm}^2] \\ \Gamma_{pr}[\text{ns}^{-1}] &= 171 \cdot I_{pr}[\text{GW}/\text{cm}^2]\end{aligned}\quad (3.31)$$

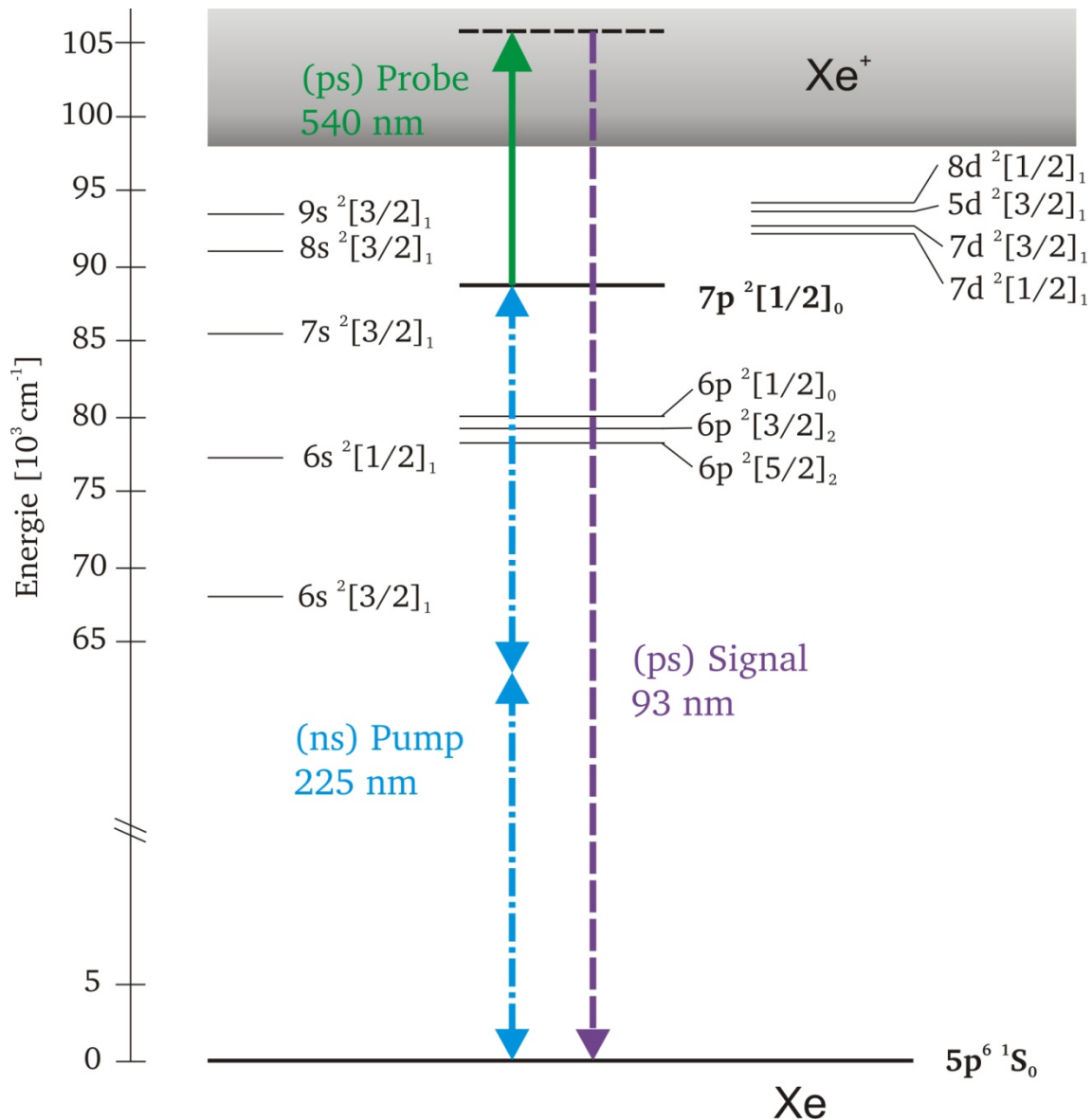


Abbildung 42: Ausschnitt aus dem Termschema des Xenon-Atoms.

Auf Grund vieler nicht-resonanter Kopplungen von Pump- und Probe-Laserstrahlung an weitere Zustände des Xenon-Atoms können dynamische Starkverschiebungen auftreten. Im ersten Teil dieser Arbeit konnte allerdings bereits beobachtet werden, dass der Probe-Laser zu keiner nennenswerten effektiven Starkverschiebung des Übergangs vom Grundzustand in die angeregten d-Zustände führt. Auf Grund ähnlicher Kopplungen im vorliegenden Fall, kann davon ausgegangen werden, dass auch hier keine vom Probe-Laser induzierten dynamischen Starkverschiebungen auftreten. Die experimentellen Ergebnisse (siehe unten) erlauben außerdem den Schluss, dass der Pump-Laser ebenfalls keine signifikanten dynamischen Starkverschiebungen hervorruft.

3.4.2. Experimenteller Aufbau

Die Erzeugung der zur adiabatisch getriebenen Frequenzkonversion benötigten Laserpulse erfolgt mit den in Kapitel 1 beschriebenen Lasersystemen. Der Pump-Laserpuls wird mit dem (ns) Lasersystem (siehe Abschnitt 1.4) und der Probe-Laserpuls wird mit dem (ps) Lasersystem (siehe Abschnitt 1.1 und 1.2) generiert. Erzeugung und Nachweis der VUV-Strahlung erfolgt mit dem in Abschnitt 1.6 eingeführten Vakuumsystem. Abbildung 43 zeigt eine schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus.

Die vom (ns) Lasersystem bereitgestellten Pump-Laserpulse mit einer Pulsenergie $E_p \leq 1.1$ mJ und einer Pulsdauer $\tau_p \approx 3.8$ ns (FWHM der Intensität) bei einer Wellenlänge von $\lambda_p = 225$ nm werden mittels geeigneter Strahlführungsoptiken zur Vakuumkammer geführt und dort in den Atomstrahl fokussiert (Brennweite der Linse $f = +300$ mm). Der Strahldurchmesser der Pump-Laserstrahlung im Wechselwirkungsgebiet beträgt $d_p \approx 100$ μm , so dass sich Pump-Laserintensitäten von bis zu einigen GW/cm^2 ergeben.

Die Probe-Laserstrahlung wird mit dem (ps)-Lasersystem erzeugt. Für die im Folgenden dargestellten Experimente beträgt die Wellenlänge der Probe-Laserstrahlung $\lambda_{pr} = 540$ nm. Bei dieser Wellenlänge beträgt die Pulsenergie $E_{pr} \leq 100$ μJ bei einer Pulsdauer von $\tau_{pr} \approx 1.1$ ps. Der Probe-Laserpuls propagiert entlang geeigneter Strahlführungsoptiken zur Vakuumkammer. Mittels einer achromatischen $\lambda/2$ -Verzögerungsplatte (HWP) wird die Polarisationsrichtung der Probe-Laserstrahlung an die Pump-Laserstrahlung angepasst. Anschließend wird die Probe-Laserstrahlung durch eine achromatische Linse ($f = +150$ mm) fokussiert. Mittels eines dichroitischen Spiegels wird die Strahlung mit der Pump-Laserstrahlung überlagert und im Wechselwirkungsgebiet räumlich überlappt. Der Strahldurchmesser im Wechselwirkungsgebiet beträgt bei den durchgeführten Experimenten $d_{pr} \approx 30$ μm . Daraus ergeben sich Intensitäten der Probe-Laserstrahlung im Bereich von einigen TW/cm^2 .

Mittels schneller und stabiler Elektronik werden Pump- und Probe-Laserpulse auch zeitlich im Wechselwirkungsgebiet überlappt. Ein variabler Verzögerungsgenerator ermöglicht dabei ein zeitliches Verschieben der beiden Laserpulse gegeneinander (siehe auch Abschnitt 1.5). Nach dem Wechselwirkungsgebiet kopropagieren Pump-, Probe- und Signal-Strahlung in das Vakuumspektrometer und werden dort spektral aufgelöst detektiert (siehe Abschnitt 1.6).

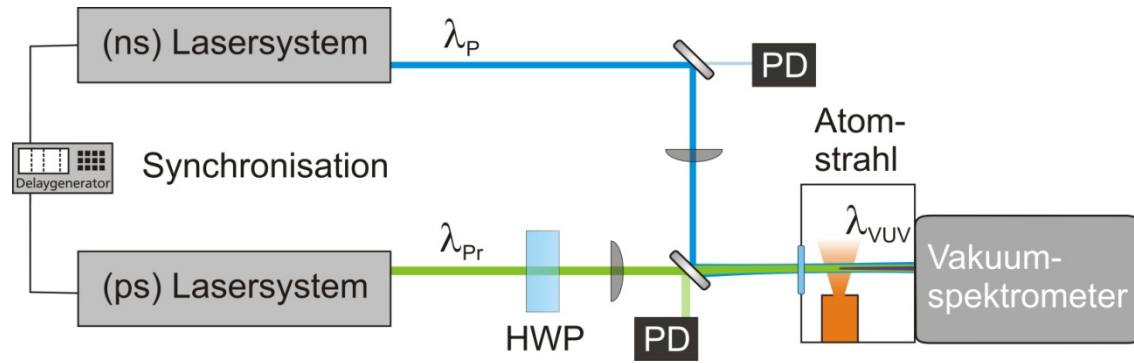


Abbildung 43: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus für die Experimente zur Frequenzkonversion bei maximaler Kohärenz.

Anstelle des Elektronenvervielfachers wird bei den Experimenten zur Frequenzkonversion bei maximaler Kohärenz eine Vielkanalplatte als Detektor verwendet. Diese hat zwar bei der Signal-Wellenlänge von $\lambda_{VUV} = 93 \text{ nm}$ eine deutlich geringere Sensitivität, ist dafür aber nahezu unempfindlich für das im Spektrometer vorhanden Streulicht der Pump-Laserstrahlung bei $\lambda_p = 225 \text{ nm}$. Nur mit der Vielkanalplatte konnte ein deutliches Signal der VUV-Strahlung detektiert werden, der Elektronenvervielfacher sättigt bereits auf Grund des Streulichtes.

Weiterhin befindet sich im Aufbau eine schnelle Photodiode (UPD-200, Alphas, Anstiegszeit 200 ps) im Strahlengang der Pump-Laserstrahlung und eine integrierende Photodiode (PDI 400, Becker&Hickl) im Strahlengang der Probe-Laserstrahlung, siehe Abbildung 43. Diese ermöglichen eine simultane Aufnahme der Pulsenergie von Pump- und Probe-Laserpuls. Für die Messungen zur zeitlichen Entwicklung der im Medium präparierten Kohärenz wird die integrierende Photodiode gegen eine weitere schnelle Photodiode (UPD-200, Alphas, Anstiegszeit 200 ps) ausgetauscht. Mittels eines schnellen Oszilloskops (Waverunner XI, LeCroy, Bandbreite 1 GHz) kann anhand der beiden Photodiodensignale die relative zeitliche Verzögerung von Pump- und Probe-Laserpuls aufgenommen werden.

3.5. Ergebnisse und Diskussion

In den vorangegangenen Abschnitten wurde gezeigt, dass die Präparation einer atomaren Kohärenz zu einer Steigerung der Konversionseffizienz von Frequenzkonversionsprozessen führt. Als mögliche Präparationstechnik wurde der CPR-Effekt vorgestellt. Dieser erfordert eine adiabatische Entwicklung des Systems. Zunächst wird daher im Folgenden untersucht, ob im Experiment adiabatisches Verhalten vorliegt. Außerdem wird sichergestellt, dass es auf Grund von Verlusten, z.B. durch Ionisation, nicht zu einer Beeinflussung der Frequenzkonversion kommt. Im Weiteren werden die Abhängigkeit der Konversionseffizienz von der Verstimmung des Pump-Lasers sowie die zeitliche Entwicklung der Kohärenz näher untersucht.

3.5.1. Bedingungen für adiabatisch getriebene Summenfrequenzmischung

Für die Realisierung von CPR ist es notwendig, dass eine adiabatische Entwicklung des Systems vorliegt. In Abschnitt 3.2.2 wurde dazu folgende Bedingung hergeleitet

$$\left| \frac{\dot{\Delta}\Omega - \Delta\dot{\Omega}}{(\Delta^2 + \Omega^2)} \right| \ll \sqrt{\Delta^2 + \Omega^2} \quad (3.32)$$

Im Falle konstanter Verstimmungen, d.h. $\dot{\Delta} = 0$, bedeutet dies bei dem gewählten Kopplungsschema, dass die zeitliche Variation der Rabifrequenz Ω_p auf dem Pump-Übergang hinreichend klein gegenüber der effektiven Rabifrequenz $\Omega_{\text{eff}} = \sqrt{\Omega_p^2 + \Delta_p^2}$ sein muss. Dies ist im Falle starker Wechselwirkung, d.h. großer Pulsflächen $\Omega_{\text{eff}} \cdot \tau_p \gg 1$ mit der Pulsdauer τ_p des Pump-Laserpulses, gegeben. Des Weiteren lässt sich zeigen, dass außerdem die Bedingung

$$\Delta_p \gg \frac{1}{\tau_2} \quad (3.33)$$

erfüllt sein muss [77]. Die Verstimmung der Probe-Laserstrahlung muss demnach groß gegenüber der natürlichen Linienbreite $1/\tau_2 \approx 17$ MHz des angeregten Zustandes $7p^2[1/2]_0$ mit der Lebensdauer $\tau_2 = 60$ ns [75] sein.

Des Weiteren sollte die Pump-Rabifrequenz $\Omega_p \propto I_p$ so groß sein, dass während der Wechselwirkung annähernd ein Mischungswinkel $\Theta^- \approx 45^\circ$ erreicht wird. Nur dann stellt der adiabatische Eigenzustand $|\alpha^-\rangle = 1/\sqrt{2} |1\rangle + 1/\sqrt{2} |2\rangle$ eine kohärente Superposition aus den beiden ungestörten Eigenzuständen mit gleichen Wahrscheinlichkeitsamplituden $c_1 = c_2$ und somit maximaler Kohärenz $\rho_{12} = 0.5$ dar.

Abbildung 44 zeigt die Abhängigkeit der Intensität der erzeugten (ps) Signal-Strahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda_{\text{VUV}} = 93$ nm von der Intensität I_p der (ns) Pump-Laserstrahlung bei nah-resonanter Zwei-Photonen-Anregung. Die Pump-Laserverstimmung von der exakten Zwei-Photonen-Resonanz beträgt ca. $\Delta_p/2\pi \approx 3$ GHz und ist somit groß gegenüber der natürlichen Linienbreite. Die Intensität der (ps) Probe-Laserstrahlung ist annähernd konstant mit $I_{\text{Pr}} \approx 1.7$ TW/cm². Mittels der im Aufbau integrierten Photodiode wird zeitgleich zur Signal-Intensität die Pulsenergie des Probe-Laserpulses aufgenommen. Die Messsoftware nimmt nur dann Daten auf, wenn die Pulsenergie bzw. die Intensität der Probe-Laserstrahlung in einem Intervall von $\pm 3\%$ um einen zuvor gewählten Wert liegt. Die Intensität der erzeugten (ps) Signal-Strahlung steigt zunächst bis zu einer (ns) Pump-Laserintensität von $I_p \approx 0.8$ GW/cm² und stagniert dann, d.h. trotz steigender Pump-Laserintensität erfolgt keine weitere Steigerung der erzeugten Intensität der Signal-Strahlung. Dies ist gleichbedeutend mit einer Sättigung der im Medium präparierten Kohärenz und weist eindeutig auf eine adiabatische Entwicklung des Systems oberhalb einer Pump-Laserintensität von $I_p \approx 0.8$ GW/cm² hin. Die Pulsfläche beträgt in diesem Fall $\Omega_{\text{eff}} \cdot \tau_p \approx 88 \gg 1$.

Der absolute Wert der Kohärenz lässt sich aus den gewonnenen Daten nicht ermitteln. Die Kohärenz ist jedoch für die gegebenen experimentellen Parameter maximal.

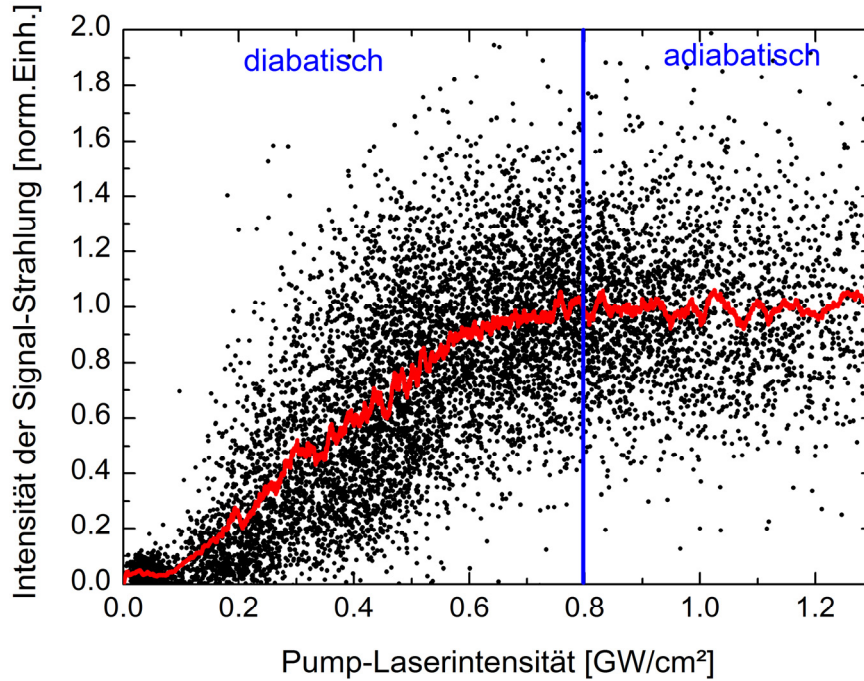


Abbildung 44: Abhängigkeit der Intensität der erzeugten (ps) Signal-Strahlung von der Intensität der (ns) Pump-Laserstrahlung. Die blaue Linie markiert den Übergang von diabatischer zu adiabatischer Entwicklung des Systems.

Weiterhin lässt sich aus Abbildung 44 entnehmen, dass es für die im Experiment erzielbaren Intensitäten der Pump-Laserstrahlung nicht zu einer signifikanten Ionisation der angeregten Xenon-Atome kommt. Ansonsten müsste sich ein langsamer Abfall der erzeugten Intensität im VUV-Spektralbereich mit steigender Pump-Laserintensität auf Grund zunehmender Ionisationsverluste zeigen. Dieses Verhalten ist trotz einer maximalen Ionisationsrate von $\Gamma_p^{max}/2\pi \approx 1.24$ GHz und einer daraus resultierenden maximalen Pulsfläche der Ionisation von $\Gamma_p^{max} \cdot \tau_p \approx 30$ nicht zu beobachten. Allerdings könnte der Präparationsprozess auch durch eine starke Ionisation der angeregten Xenon-Atome durch die wesentlich intensivere (ps) Probe-Laserstrahlung gestört werden. Daher wird ebenfalls die Abhängigkeit der Intensität der erzeugten (ps) Signal-Strahlung von der Intensität der (ps) Probe-Laserstrahlung untersucht. Das Ergebnis der Messungen ist in Abbildung 45 dargestellt.

Die Pump-Laserintensität beträgt während der Messungen ca. $I_p \approx 1.0$ GW/cm², die Verstimmung ist weiterhin $\Delta_p/2\pi \approx 3$ GHz. Anstelle der Pulsenergie des Probe-Laserpulses wird bei dieser Messung die Pulsenergie des Pump-Laserpulses mittels eines elektronischen Filters basierend auf dem integrierten Signal der schnellen Photodiode in einem Intervall von $\pm 5\%$ um den gewählten

Wert fixiert. In Abbildung 45 ist deutlich eine lineare Abhängigkeit der Intensität der erzeugten Signal-Strahlung von der Probe-Laserintensität zu erkennen. Dies spiegelt exakt das Verhalten wieder, welches man auf Grund der Maxwellschen Propagationsgleichung (3.28) erwartet. Ein im Verlauf der Kurve langsames Ansteigen der (ps) Signal-Strahlungsintensität oder gar ein Absinken auf Grund zunehmender Ionisation bei steigender Probe-Laserintensität kann auch hier nicht beobachtet werden.

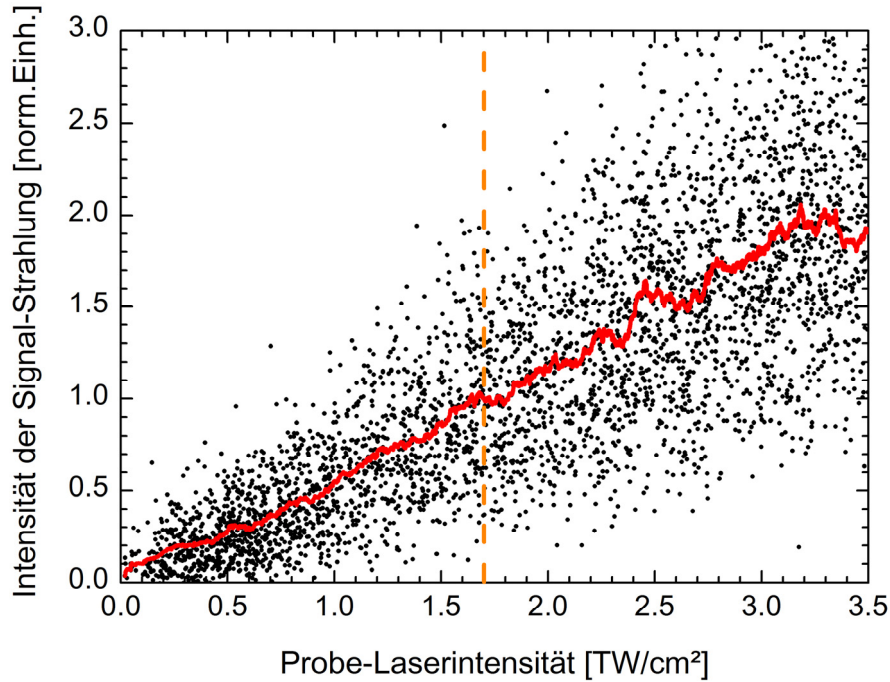


Abbildung 45: Abhängigkeit der Intensität der erzeugten (ps) Signal-Strahlung von der Intensität der (ps) Probe-Laserstrahlung. Die orangene Linie markiert die Intensität der (ps) Probe-Laserstrahlung während der Messungen mit den in Abbildung 37 dargestellten Ergebnissen.

Die Ionisationsrate nach Gleichung (3.31) berechnet sich für eine Probe-Laserintensität von $I_{Pr} \approx 1.7 \text{ TW/cm}^2$ zu $\Gamma_{Pr}/2\pi \approx 4.8 \cdot 10^4 \text{ GHz}$. Die Pulsfläche der Ionisation ergibt sich mit der Probe-Laserpulsdauer $\tau_{Pr} \approx 1.1 \text{ ps}$ zu $\Gamma_{Pr} \cdot \tau_{Pr} \approx 332$. Diese ist wesentlich größer als die Pulsfläche der Präparation $\Omega_{eff} \cdot \tau_P \approx 88$. Somit wäre zu erwarten, dass die Ionisation der angeregten Xenon-Atome durch die Probe-Laserstrahlung eine kohärente Präparation des Mediums stark stören oder ganz verhindern würde. Anhand der experimentellen Daten (siehe auch weiter unten) ist jedoch ersichtlich, dass dies nicht der Fall ist. Eine mögliche Erklärung könnte der Einfluss von autoionisierenden Rydbergzuständen (*autoionizing Rydberg states*, ARS) sein. Die beiden niedrigsten Ionisationsschwelle von Xenon $\text{Xe}^+(^2P_{3/2})$ und $\text{Xe}^+(^2P_{1/2})$ entsprechen Atomrümpfen mit den Drehimpulsen $j_c = 3/2$ und $j_c = 1/2$. Zwischen den beiden Ionisationsschwellen liegen Rydbergzustände des Atoms mit der höheren Ionisationsschwelle, d.h. vom $\text{Xe}(^2P_{1/2})$ (siehe Abbildung 46). Auf Grund von interatomarer Cou-

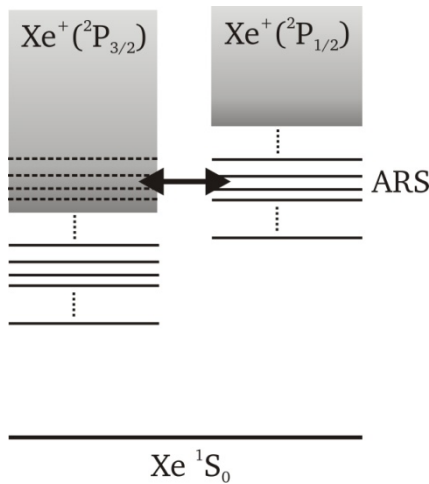


Abbildung 46: Schematische Darstellung von autoionisierenden Rydbergzuständen (ARS).

lombe-Wechselwirkung können diese Rydbergzustände in das $2P_{3/2}$ -Kontinuum zerfallen [78,79,80,81]. Solche ARS modifizieren den Ionisationsquerschnitt des entsprechenden Ionisationskontinuums erheblich im Vergleich zu den in [76] berechneten Querschnitten.

Für das gewählte Kopplungsschema koppelt der Probe-Laser den angeregten Zustand $7p\ 2[1/2]_0$ in die Nähe von ARS, insbesondere an den Zustand $13d\ 2[3/2]_1$. In Abhängigkeit von der Verstimmung der Probe-Laserfrequenz von der Resonanzfrequenz des $7p\ 2[1/2]_0 \leftrightarrow 13d\ 2[3/2]_1$ -Übergangs kann der Photoionisationsquerschnitt um Größenordnungen überhöht oder unterdrückt werden [82]. Explizite Werte des Ionisationsquerschnittes auf diesem Übergang finden sich nicht in der aktuellen Literatur. Daher kann

an dieser Stelle kein Wert für den Photoionisationsquerschnitt σ_{pr} bzw. die Ionisationsrate Γ_{pr} angegeben werden. Die Pulsfläche der Ionisation durch die Probe-Laserstrahlung $\Gamma_{pr} \cdot \tau_{pr}$ ist somit auch unbekannt. Die experimentellen Daten jedoch zeigen, dass die Verluste auf Grund von Ionisation der angeregten Xenon-Atome durch den Probe-Laserpuls vernachlässigbar sein müssen, da sie offensichtlich den Frequenzkonversionsprozess bei maximaler Kohärenz nicht signifikant beeinflussen. Selbst im Falle starker Ionisation könnten im Folgenden dennoch Aussagen zur Frequenzkonversion bei maximaler Kohärenz getroffen werden, da diabatische und adiabatische Prozesse in gleicher Weise durch Ionisationsverluste gestört werden.

3.5.2. Adiabatisch getriebene Summenfrequenzmischung in Xenon

Im Folgenden werden die experimentellen Ergebnisse zur Summenfrequenzmischung bei resonanter (diabatisch) und nah-resonanter (adiabatisch, CPR) Anregung der Xenon-Atome durch die Pump-Laserstrahlung untersucht. Bei allen Messungen wurde die Variation der Intensität von Pump- und Probe-Laserstrahlung durch eine Filterung der Pulsenergie in einem Intervall von $\pm 5\%$ (Pump) bzw. $\pm 1\%$ (Probe) so gering wie möglich gehalten.

Abbildung 47 zeigt die Variation der erzeugten Intensität der Signal-Strahlung in Abhängigkeit von der Verstimmung der Pump-Laserstrahlung bei verschiedenen Pump-Laserintensitäten. Die schwarzen Kreise entsprechen den Messdaten, wobei für jeden Datenpunkt über sieben Laserpulse gemittelt wurde. Die rote Linie stellt einen gemittelten Kurvenverlauf (Savitzky-Golay-Mittelung, Fensterbreite 200 Punkte) dar und dient nur der besseren Visualisierung.

Der (ns) Pump-Laserpuls und der (ps) Probe-Laserpulse werden für die Experimente koinzident eingestrahlt. Die zeitliche Verzögerung der beiden Laserpulse unterliegt schnellen Fluktuationen im Bereich von bis zu einer Nanosekunde.

Diese Fluktuationen sind auf die Synchronisation der beiden unabhängigen (ps) und (ns) Lasersysteme zurückzuführen und begründen sich im Wesentlichen auf Variationen im Schaltzeitpunkt des Güteschalters im Nd:YAG-Laser, welcher den (ns)-OPO pumpet (siehe Abschnitt 1.4). Die Intensität der Probe-Laserstrahlung beträgt in allen Experimenten $I_{\text{Pr}} \approx 2.1 \text{ TW/cm}^2$.

Die Pump-Laserintensität variiert von $I_{\text{P}} \approx 0.05 \text{ GW/cm}^2$ in Abbildung 47 (a), über $I_{\text{P}} \approx 0.32 \text{ GW/cm}^2$ und $I_{\text{P}} \approx 0.80 \text{ GW/cm}^2$ in Abbildung 47 (b) und (c) bis zu $I_{\text{P}} \approx 1.2 \text{ GW/cm}^2$ in Abbildung 47 (d). Die entsprechenden Zwei-Photonen-Rabifrequenzen ergeben sich gemäß Gleichung (3.30) zu $\Omega_{\text{P}}/2\pi \approx 0.13 \text{ GHz}$ (a), $\Omega_{\text{P}}/2\pi \approx 0.85 \text{ GHz}$ (b), $\Omega_{\text{P}}/2\pi \approx 2.13 \text{ GHz}$ (c) und $\Omega_{\text{P}}/2\pi \approx 3.19 \text{ GHz}$ (d).

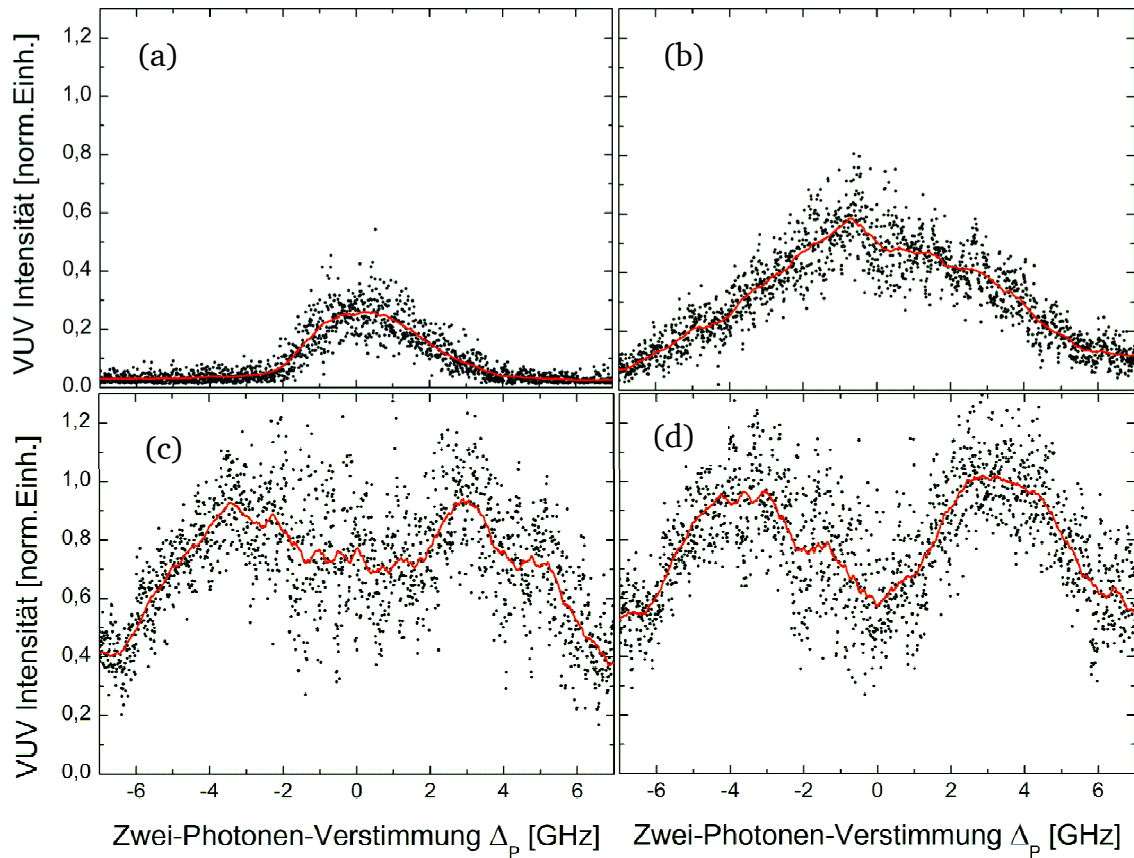


Abbildung 47: Abhängigkeit der erzeugten Intensität der Signal-Strahlung bei $\lambda_{\text{VUV}} = 93 \text{ nm}$ von der Verstimmung Δ_{P} der Pump-Laserstrahlung von der Zwei-Photonen-Resonanz auf dem atomaren Übergang in $7p \ ^2[1/2]_0 \leftrightarrow 13d \ ^2[3/2]_1$ Xenon (schwarze Punkte: experimentelle Daten, rote Linie: gemittelter Kurvenverlauf). Die Probe-Laserintensität beträgt $I_{\text{Pr}} \approx 2.1 \text{ TW/cm}^2$, die Pump-Laserintensität beträgt $I_{\text{P}} \approx 0.05 \text{ GW/cm}^2$ (a), $I_{\text{P}} \approx 0.32 \text{ GW/cm}^2$ (b), $I_{\text{P}} \approx 0.80 \text{ GW/cm}^2$ (c) und $I_{\text{P}} \approx 1.2 \text{ GW/cm}^2$ (d). Pump- und Probe-Laserpuls sind koinzident.

Im Fall der kleinsten Intensität der Pump-Strahlung (Abbildung 47(a)) liegt diese deutlich unterhalb von $I_p \approx 0.80 \text{ GW/cm}^2$ und damit im Bereich diabatischer Entwicklung. Das Maximum der erzeugten Intensität im VUV-Spektralbereich wird auf der Zwei-Photonen-Resonanz erzielt. Der spektrale Linienschwerpunktverschiebt sich bei steigender Pump-Laserintensität nicht (Abbildung 47(b),(c) und (d)). Dies bedeutet, dass bei den gewählten experimentellen Parametern keine relevanten dynamischen Starkverschiebungen auftreten. Die spektrale Linienbreite (FWHM der Intensität) beträgt ca. $\Delta\nu \approx 3.8 \text{ GHz}$ und ist auf die Dopplerverbreiterung des atomaren Übergangs zurückzuführen. Für den Übergang $5p^6 \ ^1S_0 \leftrightarrow 7p \ ^2[1/2]_0$ mit einer Resonanzfrequenz von $\nu_0 = 2.67 \cdot 10^{15} \text{ Hz}$ [46] ergibt sich aus Gleichung (1.3) eine Dopplerverbreiterung $\Delta\nu_D = 3.68 \text{ GHz}$. Diese entspricht in guter Übereinstimmung der gemessenen Dopplerverbreiterung.

In Abbildung 47 (b) liegt die Pump-Laserintensität mit $I_p \approx 0.32 \text{ GW/cm}^2$ immer noch im Bereich diabatischer Entwicklung des Systems. Daher ergibt sich auch hier wieder das Maximum der Konversionseffizienz auf der Zwei-Photonen-Resonanz. Auf Grund von Sättigungsverbreiterung [17] ist die spektrale Linienbreite von $\Delta\nu \approx 3.8 \text{ GHz}$ auf $\Delta\nu \approx 7.8 \text{ GHz}$ angewachsen. Im Falle von Sättigungsverbreiterung ergibt sich die spektrale Linienbreite zu $\Delta\nu = \sqrt{\Delta\nu_{sat}^2 + \Delta\nu_D^2}$, wobei die natürliche Linienbreite ($\approx 17 \text{ MHz}$) sowie die Laserlinienbreite ($\approx 116 \text{ MHz}$) vernachlässigt werden. Die Sättigungsverbreiterung $\Delta\nu_{sat}$ ist gegeben durch [17]

$$\Delta\nu_{sat} = \frac{\Omega_p}{2\pi} \quad (3.34)$$

Aus Gleichung (3.34) errechnet sich somit eine Rabi-Frequenz in Abbildung 47(b) von $\Omega_p/2\pi \approx 6.8 \text{ GHz}$. Diese liegt somit knapp einen Faktor 10 oberhalb der aus Strahldurchmesser, Pulsenergie und Pulsdauer des Pump-Laserpulses abgeschätzten Rabi-Frequenz. Die Ursache für diese Diskrepanz liegt zum einen vermutlich an einer nur ungenau möglichen Bestimmung des Strahldurchmessers der Pump-Laserstrahlung. Dieser kann nicht direkt im Wechselwirkungsgebiet bestimmt werden, sondern muss außerhalb der Vakuumkammer gemessen werden. Dazu wird der Pump-Laserstrahl auf eine CCD-Kamera umgelenkt, die sich in etwa im gleichen Abstand vom Umlenkspiegel befindet wie das Wechselwirkungsgebiet. Pulsenergie und Pulsdauer des Pump-Laserpulses können hingegen sehr genau bestimmt werden. Die zweite Ursache für die Abweichung der Rabi-Frequenzen findet sich im effektiven Zwei-Photonen-Dipolmatrixübergangselement μ_{12}^{eff} . Nach Gleichung (3.12) muss für die Berechnung über alle Zustände im Xenon-Atom summiert werden. Berücksichtigt werden bei der Berechnung jedoch nur die Zustände $6s \ ^2[3/2]_1$, $6s \ ^2[1/2]_1$, $5d \ ^2[1/2]_1$, $5d \ ^2[3/2]_1$ und $7s \ ^2[3/2]_1$, welche den größten Beitrag liefern sollten. Weiterhin sind die Ein-Photonen-Dipolmatrixübergangselemente aus [75] nur gerechnete und keine gemessenen Größen. In der Summe können alle diese Ungenauigkeiten die Abweichung der Rabi-Frequenzen um einen Faktor 10 erklären. Im Folgenden werden weiterhin die aus den Strahlparametern bestimmten Rabi-Fre-

quenzen angegeben, da diese zumindest konsistent abgeschätzt werden können. Die realen Rabifrequenzen liegen vermutlich um den Faktor 10 oberhalb der abgeschätzten Werte.

Abbildung 47(c) zeigt die spektrale Abhängigkeit der erzeugten Signal-Strahlung bei einer Intensität der Pump-Laserstrahlung von $I_p \approx 0.80 \text{ GW/cm}^2$ welche damit genau im Übergangsbereich von diabatischer zu adiabatischer Entwicklung liegt, vergleich Abbildung 44. Das Maximum der Konversionseffizienz wird nun nicht mehr auf der Zwei-Photonen-Resonanz sondern jeweils leicht verstimmt links und rechts der Resonanz erreicht ($\Delta_p/2\pi \approx \pm 3 \text{ GHz}$). Diese zunächst überraschende spektrale Signatur ist charakteristisch für den CPR-Effekt. Wie in Abschnitt 3.2.4 gezeigt wurde, erfolgt CPR nur außerhalb der Resonanz. Auf der Resonanz hingegen treten Rabioszillationen der Besetzung im Xenon-Atom auf. Auf Grund der schnellen zeitlichen Fluktuationen der Verzögerung von Pump- und Probe-Laserpuls wird über die durch Rabioszillationen präparierte Kohärenz gemittelt. Zusätzlich ergibt sich eine Variation der Rabifrequenz von Schuss zu Schuss durch Pulsenergiefluktuationen. Weiterhin erfolgt trotz der gewählten Strahldurchmesser von Pump- und Probe-Laserstrahlung ($d_{pr} \approx 1/3 d_p$) eine Mittelung über unterschiedliche Rabifrequenzen durch die räumliche Intensitätsverteilung der Pump-Laserstrahlung. Durch diese Effekte ist die effektiv gemessene Kohärenz bei resonanter Anregung kleiner als der maximal mögliche Wert von 0.5.

Außerhalb der Resonanz erfolgt CPR, d.h. es wird eine zeitlich langsam variierende atomare Kohärenz auf der Zeitskala der Pump-Pulsdauer präpariert. Schwankungen der Verzögerung zwischen Pump- und Probe-Laserpuls ($\approx 1 \text{ ns}$) in der Größenordnung von einem Viertel der Pump-Pulsdauer ($\tau_p \approx 3.8 \text{ ns}$) beeinflussen das Messergebnis nicht mehr wesentlich (siehe auch nächster Unterabschnitt). Somit ist die gemessene Konversionseffizienz der Summenfrequenzerzeugung direkt proportional zu der von der Pump-Rabifrequenz abhängigen maximalen Kohärenz. Die Maxima der Konversionseffizienz treten daher im Fall von CPR auf, d.h. bei nah-resonanter Anregung der Xenon-Atome durch die Pump-Laserstrahlung.

In Abbildung 47(d) beträgt die Intensität der Pump-Laserstrahlung $I_p \approx 1.20 \text{ GW/cm}^2$. Diese liegt damit weit im Bereich der adiabatischen Entwicklung. Der Einbruch der Konversionseffizienz bei resonanter Anregung im Vergleich zu nah-resonanter Anregung durch die Pump-Laserstrahlung ist hier noch deutlicher ersichtlich. Auf Grund der veränderten Intensität hat sich auch die Rabifrequenz geändert. Zum Zeitpunkt der Wechselwirkung mit dem Probe-Laserpuls befindet sich das System nun im Allgemeinen bei resonanter Anregung in einem anderen Überlagerungszustand als bei der vorangegangenen Messung. Somit ist auch die präparierte Kohärenz eine andere und folglich ändert sich die über sieben Laserpulse gemittelte Konversionseffizienz. Demnach kann der Einbruch der Konversionseffizienz in Abbildung 47(d) nicht direkt mit dem Einbruch in Abbildung 47(c) verglichen werden. Außerhalb der Resonanz können auf Grund der adiabatischen Entwicklung des Systems die Spektren verglichen werden. Wie bereits zuvor wird auch bei dieser Messung das Maximum der Kon-

versionseffizienz bei einer Verstimmung von $\Delta_p/2\pi \approx \pm 3$ GHz von der Zwei-Photonen-Resonanz erreicht. Für größere Verstimmungen fällt die Konversionseffizienz jedoch nicht direkt ab, wie dies in Abbildung 47(c) zu beobachten ist, sondern bleibt zunächst nahezu konstant. Erst ab einer Verstimmung von $|\Delta_p/2\pi| > 4.3$ GHz fällt die Konversionseffizienz deutlich ab. Diese Stabilität bezüglich der Verstimmung ist charakteristisch für den CPR-Prozess. Bei höheren Rabifrequenzen kann die Adiabasiebedingung auch noch für größere Verstimmungen von der Resonanz erfüllt werden. Folglich wird das Medium auch dann noch in einem Zustand maximaler Kohärenz präpariert.

3.5.3. Nachweis adiabatischer Entwicklung bei nah-resonanter Anregung

Trotz der im vorigen Abschnitt erwähnten Datenfilterung anhand der Pulsenergien von Pump- und Probe-Laserpuls unterliegen die Daten in Abbildung 47 einem starken Rauschen. Abbildung 48 zeigt die Schuss-zu-Schuss-Variation der generierten Intensität der Signal-Strahlung für resonante (blaue Dreiecke) und leicht verstimmte (rote Kreise) Pump-Laserstrahlung. Die experimentellen Parameter sind dabei unverändert zum vorigen Unterabschnitt mit einer Intensität der Pump-Strahlung von $I_p \approx 1.20$ GW/cm².

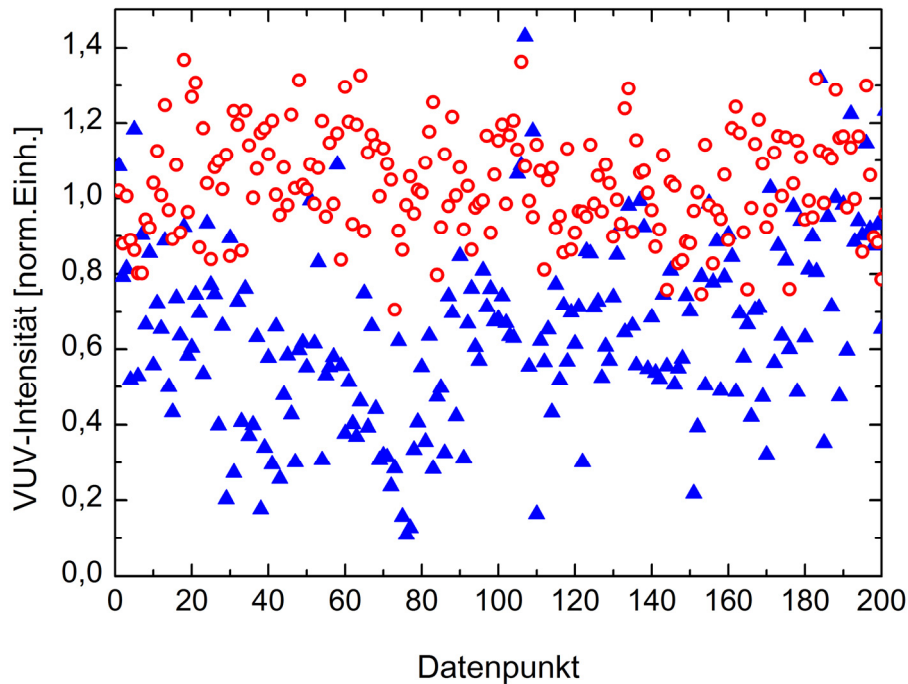


Abbildung 48: Schuss-zu-Schuss-Variation der erzeugten Intensität der Signal-Strahlung im Fall resonanter Anregung (blaue Dreiecke) und nah-resonanter Anregung (rote Kreise) durch die Pump-Laserstrahlung. Die Verstimmung im nah-resonanten Fall beträgt $\Delta_p/2\pi \approx 3$ GHz. Die Laserpulse sind koizident bei identischen Intensitäten wie in Abbildung 39(d). Der Mittelwert der Daten bei nah-resonanter Anregung ist auf 1 normiert, die Standardabweichung beträgt 0.1. Der Mittelwert bei resonanter Anregung beträgt 0.6 mit einer Standardabweichung von 0.3.

Man erkennt einen klaren Unterschied zwischen resonanter und nah-resonanter Anregung in Abbildung 48. Bei nah-resonanter Anregung, d.h. bei adiabatischer

Entwicklung, bleibt die erzeugte Intensität der Signal-Strahlung nahezu konstant. Die Standardabweichung des auf 1 normierten Mittelwertes beträgt lediglich 0.1. Bei resonanter Anregung, d.h. bei diabatischem Verhalten, schwankt die erzeugte Intensität stark. Die Schwankungen reichen von 0 bis 1 und überdecken somit den gesamten möglichen Wertebereich. Der Mittelwert ergibt sich zu 0.6 bei einer vergleichsweise großen Standardabweichung von 0.3. Dieses Verhalten zeigt deutlich den Unterschied zwischen adiabatischen und diabatischen Prozessen. Während diabatische Prozesse äußerst anfällig gegenüber Fluktuationen in experimentellen Parametern wie z.B. Pulsenergie und zeitliche Verzögerung zwischen Pump- und Probe-Laserpuls sind, zeichnen sich adiabatische Prozesse durch eine gewisse Robustheit gegenüber solchen Fluktuationen aus.

3.5.4. Zeitliche Entwicklung der kohärenten Präparation

Die bisher beobachteten Unterschiede in der kohärenten Präparation mittels diabatischer Prozesse (Rabioszillationen) und adiabatischer Prozesse (CPR) spiegeln sich auch in der zeitlichen Evolution der präparierten Kohärenz wieder. Um das zeitliche Verhalten der Kohärenz zu messen, wird die zeitliche Verzögerung zwischen Pump- und Probe-Laserpuls variiert. Auf Grund der technisch bedingten Fluktuationen dieser Verzögerung in der Größenordnung von einer Nanosekunde konnte bisher nur mit einer sehr groben zeitlichen Auflösung gearbeitet werden. Um diese Auflösung zu erhöhen, wird die integrierende Photodiode im Probe-Laserstrahlengang ebenfalls durch eine schnelle Photodiode ersetzt, siehe Abschnitt 3.4.2. Die beiden Photodioden haben eine Anstiegszeit von 200 ps und können den ultra-kurzen (ps) Laserpuls damit nicht auflösen. Dies ist für die Messung der zeitlichen Verzögerung von Pump- und Probe-Laserpuls auch nicht nötig. Lediglich die zeitliche Stabilität der ansteigenden Flanke des Photodiodensignals ist dafür relevant. Diese Stabilität soll laut Hersteller (Alphas) in der Größenordnung von 50-100 ps liegen. Mittels der numerischen Algorithmen des schnellen Oszilloskops (Waverunner XI, LeCroy, zeitliche Auflösung 400 ps) kann die zeitliche Verzögerung der beiden Laserpulse mit einer Genauigkeit von unter 100 ps in Echtzeit ermittelt werden. Dazu werden die beiden gemessenen Signalverläufe der Photodioden numerisch interpoliert und der Zeitpunkt des 50%-Levels der ansteigenden Flanken ermittelt. Die Differenz dieser Zeitpunkte entspricht der Verzögerung zwischen dem (ns) Pump-Laserpuls und dem (ps) Probe-Laserpuls.

Abbildung 49 zeigt die erzeugte Intensität der Signal-Strahlung in Abhängigkeit von der zeitlichen Verzögerung zwischen Pump- und Probe-Laserpuls. Die schwarzen Punkte repräsentieren Einzelschussdaten, die roten Kurven einen gleitenden Durchschnitt über diese Daten (Fensterbreite 200 Punkte). Die Intensitäten von Pump- und Probe-Laserstrahlung betragen wieder $I_p \approx 1.20 \text{ GW/cm}^2$ bzw. $I_{pr} \approx 2.10 \text{ TW/cm}^2$. Die entsprechenden Pulsenergien werden wieder in einem Intervall von $\pm 5\%$ (Pump) bzw. $\pm 1\%$ (Probe) mittels Datenfilterung annähernd konstant gehalten.

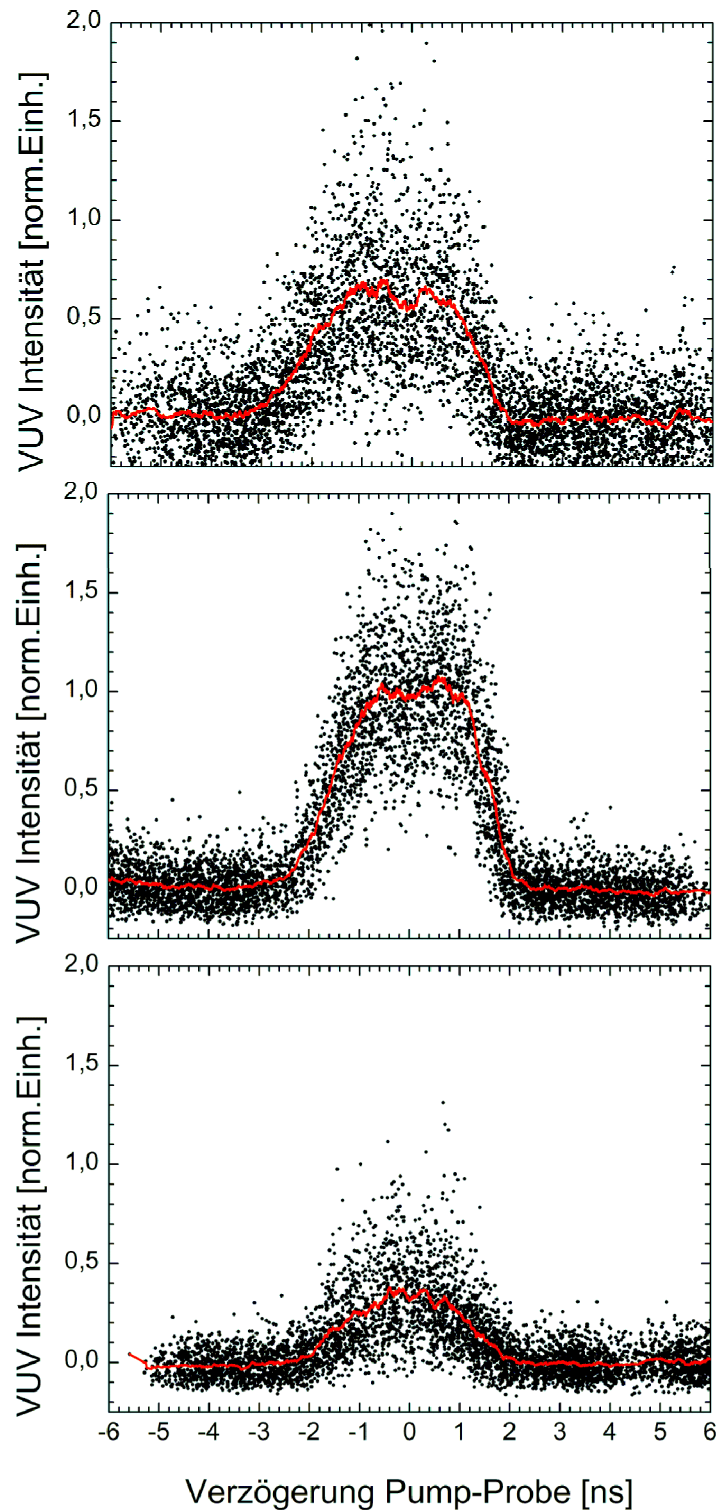


Abbildung 49: Zeitliche Entwicklung der kohärenten Präparation bei (a) resonanter Anregung, (b) nah-resonanter Anregung und (c) stark verstimmter Anregung der Xenon-Atome durch die Pump-Laserstrahlung. Dargestellt ist die erzeugte Intensität der Signal-Strahlung gegenüber der zeitlichen Verzögerung von (ns) Pump- und (ps) Probe-Laserpuls. Die schwarzen Punkte repräsentieren Einzelschussdaten, die roten Linien sind die gemittelten experimentellen Daten.

Abbildung 49(a) zeigt die zeitliche Entwicklung der kohärenten Präparation bei resonanter Anregung ($\Delta_p \approx 0$) der Xenon-Atome durch die Pump-Laserstrahlung. Es ergibt sich eine Plateau-ähnliche Struktur mit einem starken Rauschen. Dieses Rauschen überdeckt wieder den gesamten möglichen Wertebereich von 0 bis zum Maximalwert der erzeugten Intensität im VUV-Spektralbereich. Im Vergleich zu Abbildung 49(b), welche die zeitliche Entwicklung der Kohärenz bei nah-resonanter Anregung ($\Delta_p/2\pi \approx 3$ GHz) durch die Pump-Laserstrahlung zeigt, fällt außerdem auf, dass das Plateau wesentlich niedriger liegt als bei nah-resonanter Anregung, d.h. adiabatischer Entwicklung. Dieses Verhalten deutet stark auf Rabioszillationen bei resonanter Anregung hin. Bei einer Rabifrequenz von $\Omega_p/2\pi \approx 3.2$ GHz können die Rabioszillationen jedoch nicht zeitlich aufgelöst werden. Außerdem führen Mittelungen über das räumliche Strahlprofil sowie die verbleibenden Fluktuationen der Pump-Pulsenergie zu einer Mittelung über viele Rabifrequenzen und einem verwaschen der zeitlichen Entwicklung der kohärenten Präparation. Abbildung 49(a) liefert dennoch starke Hinweise auf Rabioszillationen und eine zwischen 0 und 0.5 oszillierende atomare Kohärenz.

In Abbildung 49(b) ist ebenfalls eine deutliche Plateau-Struktur mit einer um nahezu einen Faktor zwei größeren Konversionseffizienz im Vergleich zu Abbildung 49(a) zu erkennen. Auch das Rauschen des Signals ist geringer als bei resonanter Anregung. Diese Struktur spiegelt das typische adiabatische Verhalten des Systems im Fall von CPR wieder. Es wird eine langsam variierende Kohärenz präpariert, die robust gegenüber Schwankungen in den experimentellen Parametern ist.

Abbildung 49(c) zeigt die zeitliche Entwicklung der kohärenten Präparation im Falle großer Verstimmungen ($\Delta_p/2\pi \approx 8$ GHz). In diesem Fall ergibt sich eine abgerundete Struktur, welche den theoretischen Erwartungen aus Abschnitt 3.2.2 entspricht (siehe dazu auch Abbildung 40). Das System entwickelt sich weiterhin adiabatisch, aber auf Grund der großen Verstimmung kann der maximale Mischungswinkel und damit die maximale Kohärenz nicht mehr erzielt werden.

3.6. Erzeugung breitbandiger Spektren im VUV-Spektralbereich

Die bisher präsentierten Daten zeigen deutlich den Vorteil adiabatisch getriebener Frequenzkonversionsprozesse. Durch die Kombination von vergleichsweise langen (ns) Laserpulsen zur kohärenten Präparation des nichtlinearen Mediums und der Wechselwirkung von ultra-kurzen (ps) Laserpulsen mit der präparierten Kohärenz, ist es möglich, effizient ultra-kurze (ps) Strahlungspulse im tiefen vakuum-ultravioletten Spektralbereich zu erzeugen. Auf Grund der adiabatischen Entwicklung des Systems erweist sich der Konversionsprozess als robust gegenüber Fluktuationen der experimentellen Parameter. Der (ps) Probe-Laserpuls ist spektral durchstimmbar, so dass mit dem beschriebenen experimentellen Schema die Erzeugung spektral durchstimmbarer Laserstrahlung im tiefen VUV-Spektralbereich möglich ist. In zukünftigen Experimenten können auch (fs) Probe-Laserpulse oder Laserpulse mit extrem großen spektralen Bandbreiten bis hin zum Weißlichtkontinuum mittels der präsentierten adiabatisch getriebenen Sum-

menfrequenzmischung konvertiert werden. Als Fernziel ist so die Erzeugung von Laserpulsen mit Pulsdauern unterhalb einer Femtosekunde im VUV-Spektralbereich möglich.

Als einen ersten Schritt in Richtung dieses Fernziels und zum Test der bis hierhin experimentell umgesetzten Technik soll an Stelle des bandbreiten-begrenzten (ps) Probe-Laserpulses ein spektral verbreiteter (ps) Probe-Laserpuls in den VUV-Spektralbereich konvertiert werden. Dazu wird im Folgenden zunächst die Erzeugung dieser spektral verbreiteten Probe-Laserpulse erläutert und anschließend die Frequenzkonversion in dem kohärent präparierten Medium diskutiert.

3.6.1. Erzeugung spektral verbreiteter (ps) Probe-Laserpulse

Eine spektrale Verbreiterung von ultra-kurzen Laserpulsen erfolgt typischerweise während der Propagation der Laserpulse in einem Medium. Auf Grund der hohen Spitzenintensitäten von ultra-kurzen Laserpulsen kommt es zu einer Vielzahl von optisch nichtlinearen Prozessen, wie z.B. der Selbstphasenmodulation (SPM) sowie zu stimulierter Raman- und Brillouin-Streuung [44,83,84,85] und daraus resultierenden Vierwellenmischprozessen. Bei hinreichend langer Wechselwirkungsstrecke und geeigneten optischen Materialien können auf diese Weise Spektren mit einer Bandbreite von mehr als einer Oktave generiert werden [86,87].

Für die experimentelle Umsetzung wird zunächst versucht eine spektrale Verbreiterung der (ps) Probe-Laserpulse durch Fokussierung dieser Strahlung in einer mit Wasser gefüllten Zelle zu erreichen. Dabei zeigt sich, dass die zur spektralen Verbreiterung notwendigen Intensitäten bei Verwendung von (ps) Laserpulsen nur mit derart hohen Pulsenergien erzielt werden können, dass auf Grund thermischer Effekte ein Verdampfen des Wassers erfolgt und es zur Bläschenbildung kommt. Diese Bläschen stören stark die spektrale Verbreiterung und führen zu einer dramatischen Fluktuation der Pulsenergie des Probe-Laserpulses hinter der Wasserzelle. Außerdem wird das räumliche Strahlprofil stark gestört.

Wählt man als Propagationsmedium einen Festkörper, z.B. ein Quarz- oder Saphirfenster, so erfolgt eine Selbstfokussierung der Probe-Laserstrahlung (vergleich dazu auch Abschnitt 1.3) bedingt durch den nichtlinearen Brechungsindex dieser Medien und des damit einhergehenden Kerreffektes. Der Strahldurchmesser sinkt und die Intensität steigt, was zunächst vorteilhaft für die spektrale Verbreiterung erscheint. Allerdings steigt die Intensität meist über die Zerstörschwelle der Festkörpermedien und die Fenster werden beschädigt. Daher erweist sich auch dieser Ansatz als nicht praktikabel zur Erzeugung breitbandiger Spektren mit (ps) Laserpulsen.

Als Alternative werden optische Fasern mit Quarzglaskern zur spektralen Verbreiterung der (ps) Probe-Laserpulse eingesetzt. In diesem Fall bestimmt der Kerndurchmesser der Faser die räumliche Ausdehnung der Probe-Laserstrahlung und damit deren Intensität. Diese ist zwar deutlich geringer als bei der direkten Fokussierung in ein Medium, jedoch ist die Propagationstrecke um Größenordnungen länger. Durch den Einsatz einer einmodigen optischen Faser können im Labor spektrale Bandbreiten von $\Delta\nu_{pr} \geq 25$ THz erzielt werden. Allerdings sinkt

die Pulsenergie dabei von eingangs $50\ \mu\text{J}$ auf lediglich $1 - 2\ \mu\text{J}$ am Ausgang der Faser. Die spektrale Intensität der Probe-Laserstrahlung sinkt dadurch soweit ab, dass die Detektionseffizienz des Vakuumspektrometers nicht mehr ausreicht, um die frequenzkonvertierte Strahlung nachzuweisen. Die Verwendung von mehrmodigen optischen Fasern erlaubt einen größeren Strahldurchmesser innerhalb der Faser und damit eine geringere Intensität und somit auch eine geringere spektrale Verbreiterung. Gleichzeitig ist die Transfereffizienz dieser Fasern deutlich besser als für einmodige Fasern. Die spektrale Bandbreite am Ende der Faser sinkt für eine Mehrmodenfaser mit einem Kerndurchmesser von $150\ \mu\text{m}$ auf $\Delta\nu_{Pr} = 3 - 4\ \text{THz}$ und gleichzeitig steigt die Pulsenergie am Faserausgang auf $5 - 6\ \mu\text{J}$. Die spektrale Intensität wäre jetzt hinreichend für eine Detektion der konvertierten Strahlung mit dem Vakuumspektrometer. Allerdings weist das Strahlprofil am Faserausgang keine gaußförmige Intensitätsverteilung mehr auf sondern die Intensität ist räumlich nahezu homogen verteilt. Ein derartiges Strahlprofil erlaubt es nicht mehr, einen Fokusbereich der Probe-Laserstrahlung von ca. $30\ \mu\text{m}$ im Wechselwirkungsgebiet zu erreichen. Der Strahldurchmesser im Wechselwirkungsgebiet liegt stattdessen in der Größenordnung des Kerndurchmessers der Mehrmodenfaser. Dadurch sinkt die Intensität der Probe-Laserstrahlung im Wechselwirkungsgebiet stark und es kann keine hinreichende Konversionseffizienz in den VUV-Spektralbereich erreicht werden.

Eine spektrale Verbreiterung der verstärkten Probe-Laserpulse kann unter den vorliegenden experimentellen Bedingungen mittels optischer Fasern nicht realisiert werden. Die spektral verbreiterten Pulse müssten nach der Propagation durch ein geeignetes Medium erneut verstärkt werden, um für die Frequenzkonversion hinreichende spektrale Intensitäten zu gewährleisten. Allerdings besteht die Möglichkeit die Probe-Laserpulse *vor* der Nachverstärkung im Farbstoffverstärker spektral zu verbreitern. Bedingt durch die vor dem Verstärker noch geringe Pulsenergie der Probe-Laserpulse und der daraus resultierenden niedrigen Intensitäten erfolgt keine spektrale Verbreiterung der Laserpulse durch Propagationseffekten in entsprechenden Medien. Jedoch ermöglicht der (ps)-OPO die Erzeugung von spektral verbreiterten Probe-Laserpulsen (siehe Abschnitt 1.1). Dazu muss lediglich der PPLN-Kristall leicht aus der optimalen Position innerhalb des OPO-Resonators verschoben werden. Der PPLN-Kristall befindet sich am Ort eines resonator-internen Fokuspunktes der umlaufenden Strahlung. Durch leichtes Verschieben des Kristalls entlang der Strahlrichtung kann die räumliche Phasenanpassung der Differenzfrequenzmischung über die Kristalllänge variiert werden. Als Resultat ergeben sich spektral verbreiterte Ausgangspulse des (ps)-OPO bei unveränderter Pulsdauer.

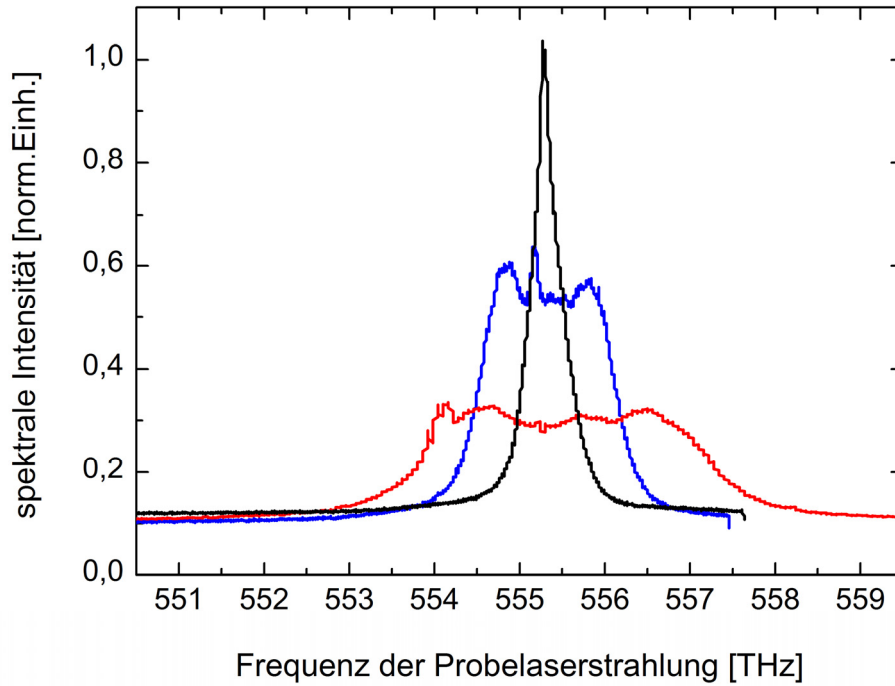


Abbildung 50: Spektrale Intensitätsverteilung der Probe-Laserstrahlung bei drei verschiedenen spektralen Bandbreiten: bandbreiten-begrenzter Laserpuls (schwarze Linie, $\Delta\nu_{pr} \approx 0.4 \text{ THz}$), leicht spektral verbreiteter Laserpuls (blaue Linie, $\Delta\nu_{pr} \approx 1.7 \text{ THz}$), und stark spektral verbreiteter Laserpuls (rote Linie, $\Delta\nu_{pr} \approx 3.5 \text{ THz}$). Pulsdauer und Pulsenergie des Probe-Laserpulses sind bei allen drei Messungen konstant.

Abbildung 50 zeigt die spektrale Intensitätsverteilung eines bandbreitenbegrenzten (schwarze Kurve) sowie eines spektral leicht (blaue Kurve) und stark (rote Kurve) verbreiterten Probe-Laserpulses nach der Verstärkung im Farbstoffverstärker. Die Spektren wurden mit Hilfe des eigens für die Charakterisierung der ultra-kurzen (ps) Laserpulse aufgebauten Czerny-Turner-Spektrometers aufgenommen (siehe Abschnitt 1.3 und [23]). Im Falle des bandbreitenbegrenzten Probe-Laserpulses ergibt sich eine glockenförmige spektrale Intensitätsverteilung mit einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu_{pr} \approx 0.4 \text{ THz}$. Die spektral verbreiterten Laserpulse hingegen zeigen eine nahezu homogene spektrale Intensitätsverteilung mit einer vollen Halbwertsbreite von $\Delta\nu_{pr} \approx 1.7 \text{ THz}$ bzw. $\Delta\nu_{pr} \approx 3.5 \text{ THz}$. Im Bereich des zu beobachtenden Plateaus weisen die verbreiterten Laserpulse leichte Variationen der spektralen Intensität auf.

3.6.2. Adiabatisch getriebene Frequenzkonversion spektral breiter Laserpulse

Der (ps)-OPO erlaubt die Erzeugung von Probe-Laserpulsen mit variabler Bandbreite zwischen $\Delta\nu_{pr} \approx 0.4 \text{ THz}$ und $\Delta\nu_{pr} \approx 4.0 \text{ THz}$ (FWHM der Intensität). Die Zentralwellenlänge beträgt weiterhin $\lambda_{pr} \approx 540.0 \text{ nm}$ bzw. die Zentralfrequenz $\nu_{pr} = c/\lambda_{pr} \approx 555.55 \text{ THz}$. Die Pulsdauer dieser Laserpulse ist konstant mit $\tau_{pr} \approx 1.1 \text{ ps}$, unabhängig von der spektralen Bandbreite. Die Pulsenergie wird mittels elektronischer Datenfilterung in einem Intervall von $\pm 1\%$ konstant gehalten. Abbildung 51 zeigt die Abhängigkeit der erzeugten Intensität der Signal-

Strahlung von der spektralen Bandbreite der Probe-Laserpulse. Man erkennt deutlich, dass die erzeugte Intensität im VUV-Spektralbereich unter den genannten experimentellen Bedingungen unabhängig von der spektralen Bandbreite der Probe-Laserpulse ist.

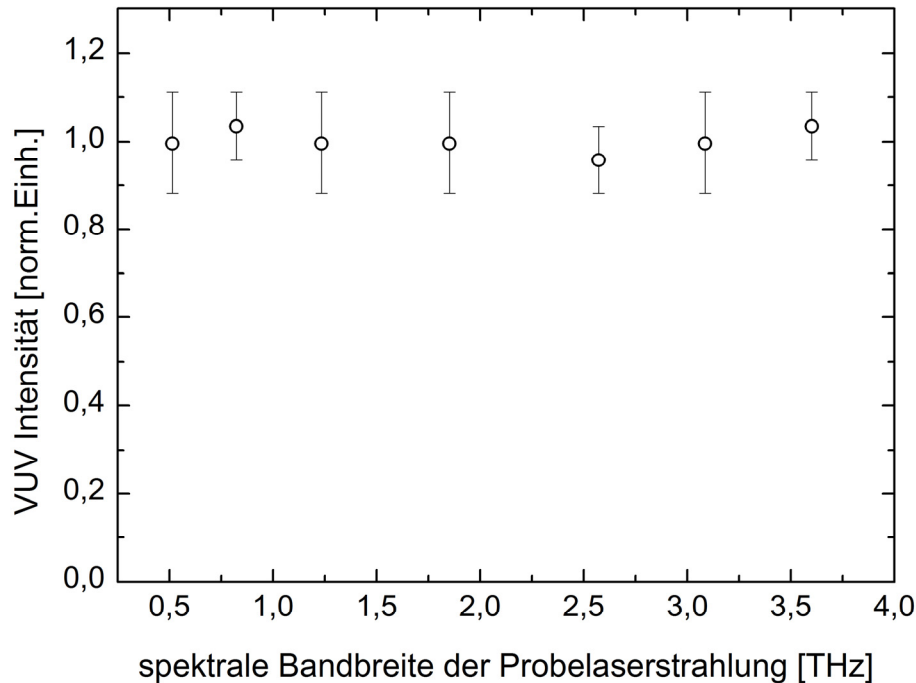


Abbildung 51: Abhängigkeit der erzeugten Intensität der Signal-Strahlung von der spektralen Bandbreite der Probe-Laserpulse bei adiabatisch getriebener Summenfrequenzerzeugung

In Abschnitt 3.5.1 wurde diskutiert, dass der Probe-Laserpuls den angeregten Zustand der Xenon-Atome in die Nähe eines ARS koppelt. Dieser ARS modifiziert den Photoionisationsquerschnitt und damit die Ankopplung der Probe-Laserstrahlung an das Kontinuum typischerweise dramatisch. Um auszuschließen, dass es auf Grund des ARS im relevanten Spektralbereich von 537 nm bis 545 nm zu einer deutlichen Modulation des Photoionisationsquerschnittes und damit der Konversionseffizienz kommt, wird die bandbreiten-begrenzte Probe-Laserstrahlung in diesem Spektralbereich durchgestimmt. Dabei kann keine signifikante Änderung der im VUV erzeugten Intensität beobachtet werden. Dies erlaubt den Schluss, dass die Ankopplung der Probe-Laserstrahlung an das Kontinuum im Spektralbereich von 537 nm bis 545 nm konstant ist.

Die spektrale Bandbreite der erzeugten VUV-Strahlung kann mit dem vorhandenen Vakuumspektrometer nicht gemessen werden, da das spektrale Auflösungsvermögen im VUV-Spektralbereich 3.5 THz oder mehr beträgt. Damit ist es nicht möglich spektrale Bandbreiten von unter 4.0 THz, wie sie auf Grund der Bandbreite der Probe-Laserstrahlung zu erwarten sind, hinreichend aufzulösen. Das Spektrum der Probe-Laserstrahlung *nach* der Frequenzkonversion lässt durch die geringe absolute Konversionseffizienz von typischerweise 10^{-4} und

den damit verbundenen geringen Abbau der spektralen Intensität durch den Frequenzkonversionsprozess ebenfalls keine Rückschlüsse auf das Spektrum der VUV-Strahlung zu. Um die spektrale Intensitätsverteilung der erzeugten VUV-Strahlung zu bestimmen, müsste ein Vakuumspektrometer mit deutlich höherem Auflösungsvermögen verwendet werden. Ein entsprechendes Gerät steht in der Arbeitsgruppe aber nicht zur Verfügung.

Die präsentierten Ergebnisse erlauben dennoch die Schlussfolgerung, dass es mittels adiabatisch getriebener Summenfrequenzmischung möglich ist, ultra-kurze Laserpulse mit großen spektralen Bandbreiten effizient in den tiefen VUV-Spektralbereich zu konvertieren.

3.7. Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse

Mittels adiabatisch getriebener Summenfrequenzmischung gelang es ultra-kurze Laserpulse im tiefen vakuum-ultravioletten Spektralbereich zu erzeugen. Dazu wurden Xenon-Atome durch einen (ns) Pump-Laserpuls nah-resonant zu dem Zwei-Photonen-Übergang $5p^6\ ^1S_0 \leftrightarrow 7p\ ^2[1/2]_0$ angeregt. Bei ausreichend intensiver Pump-Laserstrahlung tritt dann der Effekt des *coherent population return* auf. Auf Grund der damit verbundenen adiabatischen Entwicklung des Systems während der Wechselwirkung werden die Xenon-Atome in einer kohärenten Superposition aus Grund- und angeregtem Zustand präpariert. Ist die Rabi-Frequenz $\Omega_p \propto I_p$ auf dem Zwei-Photonen-Übergang hinreichend groß, so sind die Wahrscheinlichkeitsamplituden c_1 und c_2 der beiden Zustände gleich groß und es wird eine transiente maximale atomare Kohärenz $|\rho_{12}| = |c_1 c_2^*| = 0.5$ präpariert. Die maximale atomare Kohärenz führt zu einer Überhöhung der nichtlinearen Polarisation des Mediums. Ein gleichzeitig eingestrahelter (ps) Probe-Laserpuls wechselwirkt mit dem präparierten Medium und es kommt zur Summenfrequenzmischung von zwei Pump-Laserphotonen und einem Probe-Laserphoton. Die Konversionseffizienz der Summenfrequenzmischung wird durch die atomare Kohärenz ebenfalls überhöht. Mit diesem Schema aus kohärenter Präparation des Mediums durch einen vergleichsweise langen (ns) Pump-Laserpuls und Frequenzkonversion eines ultra-kurzen (ps) Probe-Laserpulses können effizient ultra-kurze Pulse im tiefen vakuum-ultravioletten Spektralbereich generiert werden.

In den ersten Experimenten wurde zunächst die Abhängigkeit der erzeugten Intensität im VUV-Spektralbereich von der Verstimmung der Pump-Laserstrahlung von der Zwei-Photonen-Resonanz untersucht. Dabei zeigte sich die typische und zugleich etwas überraschende Signatur eines CPR-Prozesses: Die maximale Konversionseffizienz, d.h. die maximale atomare Kohärenz, wird erreicht, wenn die Pump-Laserstrahlung leicht von der exakten Zwei-Photonen-Resonanz verstimmt ist. In diesem Fall entwickelt sich das System adiabatisch und zeichnet sich dabei zusätzlich durch eine Robustheit gegenüber Variationen der experimentellen Parameter, wie z.B. Pump-Laserintensitäten und -Verstimmung, aus. Auf der Resonanz hingegen treten Rabioszillationen auf. Auf Grund von Mittelungseffekten ist die effektiv präparierte atomare Kohärenz in diesem Fall geringer als bei nah-resonanter Anregung und außerdem stark anfällig für Variationen der experi-

mentellen Parameter, vor allem der zeitlichen Verzögerung zwischen Pump- und Probe-Laserpuls. Durch Variation dieser Verzögerung konnte anhand der erzeugten Intensität der VUV-Strahlung die zeitliche Entwicklung der Kohärenz während der Pump-Pulsdauer untersucht werden. Auch hier zeigte sich wieder die Stabilität des Konversionsprozesses im Falle adiabatischer Entwicklung in Form eines Plateaus der erzeugten Intensität im VUV-Spektralbereich bezüglich der Verzögerung von (ns) Pump- und (ps) Probe-Laserpuls. Auf Grund von Mittelungseffekten und einer nicht perfekten Synchronisation der Laserpulse war es nicht möglich die Rabioszillationen im Falle nah-resonanter Anregung der Xenon-Atome durch die Pump-Laserstrahlung aufzulösen.

Die letzten Experimente zeigen die Möglichkeit zur Frequenzkonversion von (fs) Probe-Laserpulsen oder Laserpulsen mit großen spektralen Bandbreiten in den VUV-Spektralbereich mittels des vorgestellten Mischschemas. Es konnten Bandbreiten bis hoch zu $\Delta\nu_{pr} \approx 4.0$ THz erfolgreich konvertiert werden. Durch das adiabatische Verhalten des Systems übertrifft die Konversionseffizienz dabei konventionelle Summenfrequenzmischungsprozesse. Sämtliche dargestellten Daten zeigen den klaren Vorteil der adiabatisch getriebenen Summenfrequenzmischung zur Erzeugung ultra-kurzer Pulse bzw. großer Bandbreiten im tiefen VUV-Spektralbereich.

Zusammenfassung und Ausblick

Das Ziel dieser Arbeit bestand in der kontrollierten und effizienten Erzeugung von Strahlung im tiefen vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich mit Wellenlängen im Bereich von 100 nm. Dabei wurden ultra-kurze (ps) Laserpulse eingesetzt werden, um so auch ultra-kurze Pulsdauern der frequenzkonvertierten Strahlung zu erzielen.

Im ersten Teil dieser Arbeit wurde ein Lasersystem aufgebaut, welches die Erzeugung, Verstärkung und Charakterisierung von ultra-kurzen (ps) Laserpulsen im sichtbaren Spektralbereich ermöglicht. Die Schwierigkeit bestand dabei in der Anforderung, Laserpulse zu generieren, die sich durch eine Stabilität von Pulsdauer und Pulsenergie sowie einem langzeitstabilen Verhalten des gesamten Lasersystems auszeichnet. Dazu wurden unterschiedlichste Lasersysteme unter Verwendung von schneller und stabiler Elektronik miteinander synchronisiert. Mittels kommerzieller Lasersysteme, eines synchron-gepumpten optisch parametrischen Oszillator sowie eines gepulsten Farbstoffverstärkers samt Hochleistungspumplaser können (ps) Laserpulse im Wellenlängenbereich von 527 nm bis 550 nm mit Pulsenergien von bis zu 150 μ J bei einer Pulsdauer von ca. 1.1 ps erzeugt werden. Zur zeitlichen und spektralen Charakterisierung der nachverstärkten ultra-kurzen Laserpulse wurde außerdem ein Gerät entwickelt, welches auf dem Prinzip des *frequency-resolved optical gating* basiert. Durch die Kombination eines Autokorrelators mit einem Spektrometer ist es möglich neben der Pulsdauer sowie der spektralen Intensitätsverteilung auch die zeitliche Variation der Laserfrequenz während des Laserpulses zu vermessen. In einem weiteren Schritt wurde zusätzlich zum (ps) Lasersystem ein spektral durchstimmbares (ns) Lasersystem auf Basis eines (ns)-optisch parametrischen Oszillators wieder aufgebaut. Durch den Austausch des vorherigen Pumplasers gegen einen neuen, speziell angepassten Pumplaser, konnte die Pulsenergie der erzeugten bandbreiten-begrenzten (ns)-Laserpulse im sichtbaren Spektralbereich deutlich erhöht werden. Allerdings hat sich auf Grund der veränderten Pumplaserspezifikationen die räumliche Intensitätsverteilung deutlich verschlechtert. Durch eine geeignete Synchronisation des (ns) Lasersystems auf das (ps)-Lasersystem besteht jetzt die Möglichkeit Experimente bei simultanem Einsatz von (ns)- und (ps)-Laserpulsen zu realisieren. Zeitgleich wurde ein neuer Farbstoffverstärker entwickelt, der durch ein modernisiertes Design der einzelnen Verstärkerstufen zu einer deutlichen Verbesserung des räumlichen Strahlprofils der verstärkten (ps) Laserpulse führt. Ebenso konnte die maximale Pulsenergie erhöht werden. Allerdings bestehen zurzeit noch Probleme mit verstärkter Spontanemission.

Der zweite Teil dieser Arbeit beschäftigte sich mit der kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen zur Erzeugung von VUV-Strahlung. Erstmals wurden dabei (ps)-Laserpulse bei der experimentellen Umsetzung verwendet. Mittels Frequenzverfünffachung und Vierwellenmischung wird simultan VUV-Strahlung mit einer Wellenlänge von 106 nm auf zwei Konversionspfaden generiert. Die beiden Konversionspfade unterschieden sich dabei lediglich in der Anzahl der pro VUV-Photon konvertierten Photonen. Im ersten Fall werden fünf

Photonen mit der fundamentalen Wellenlänge $\lambda_1 = 530$ nm in ein VUV-Photon konvertiert. Im zweiten Fall werden ein Photon mit der fundamentalen Wellenlänge und zwei Photonen mit der frequenzverdoppelten Wellenlänge $\lambda_2 = 265$ nm in ein VUV-Photon konvertiert. Als nichtlineares Medium dient dabei ein dichter Strahl aus Xenon-Atomen. Die beiden Konversionsprozesse werden resonant überhöht, indem die fundamentale Laserstrahlung Fünf-Photonen-resonant zum atomaren Übergang vom Grundzustand $5p^6\ ^1S_0$ in den angeregten Zustand $8d\ ^2[1/2]_1$ der Xenon-Atome abgestimmt wird.

Durch die Variation der relativen Phase zwischen den beiden Konversionsprozessen, d.h. zwischen fundamentalem und frequenzverdoppeltem Laserfeld, konnte eine deutliche Modulation der Intensität der erzeugten VUV-Strahlung auf Grund von Quanteninterferenzeffekten beobachtet werden. Der erzielte Kontrast von 20% ist deutlich geringer als der maximal mögliche Kontrast von 100%. Die Ursache dafür ist im Wesentlichen der Effekt der räumlichen Phasen Anpassung auf den einzelnen Konversionspfaden, der dazu führt, dass die Interferenz der beiden Konversionspfade unvollständig ausfällt. Dennoch konnte eindeutig nachgewiesen werden, dass sich kohärente Kontrolltechniken auch auf Frequenzkonversionsprozesse hoher Ordnung bei der Verwendung von ultra-kurzen (ps) Laserpulsen zur Erzeugung von VUV-Strahlung anwenden lassen.

Im dritten Teil dieser Arbeit wurde die Anwendbarkeit von adiabatisch getriebener Summenfrequenzmischung zur Erzeugung von ultra-kurzen Laserpulsen im VUV-Spektralbereich untersucht. Dazu wurde das nichtlineare Medium, das wieder aus einem dichten Strahl aus Xenon-Atomen besteht, mittels eines Zwei-Photonen-Prozesses zunächst nah-resonant angeregt. Bei leichten Verstimmungen der Frequenz der Pump-Laserstrahlung von der exakten Zwei-Photonen-Resonanz des $5p^6\ ^1S_0 \leftrightarrow 7p\ ^2[1/2]_0$ -Übergangs tritt der Effekt des *coherent population return* (CPR) auf. Dabei wird das atomare System während der Wechselwirkung mit dem Pump-Laserpuls in einen kohärenten Überlagerungszustand aus Grund- und angeregtem Zustand überführt. Bei hinreichend hoher Intensität der Pump-Laserstrahlung, sind die Wahrscheinlichkeitsamplituden der beiden Zustände in der kohärenten Überlagerung identisch und das System wird in einem Zustand maximaler atomarer Kohärenz $|\rho_{12}| = |c_1^*c_2| = 0.5$ präpariert. Auf Grund dieser Kohärenz erfolgt eine Überhöhung der induzierten nichtlinearen Polarisation des Mediums, welche bei Wechselwirkung des Systems mit einem weiteren, ultra-kurzen (ps) Probe-Laserpuls in einer Überhöhung der Effizienz der auftretenden Summenfrequenzmischung resultiert. Es wurde demonstriert, dass die Kombination aus kohärenter Präparation mittels eines (ns) Pump-Laserpulses und Frequenzkonversion eines (ps) Probe-Laserpulses die effiziente Erzeugung von ultra-kurzen Laserpulsen im VUV-Spektralbereich ermöglicht. In einem weiteren Schritt wurde gezeigt, dass sich das umgesetzte Mischschema auch zur Konversion von spektral verbreiterten Probe-Laserpulsen anwenden lässt. Dies ermöglicht die Erzeugung großer spektraler Bandbreiten im VUV-Spektralbereich und als Fernziel die effiziente Erzeugung von Laserpulsen mit sehr kurzen Wellenlängen und Pulsdauern von weniger als einer Femtosekunde.

Die zukünftigen Experimente im Bereich der adiabatisch getriebenen Summenfrequenzmischung sollten auf die Konversion von Spektren mit größerer Bandbreite abzielen. Für die Erzeugung von Laserpulsen im VUV-Spektralbereich mit einer Pulsdauer von 1 fs ist eine spektrale Bandbreiten der Laserstrahlung von mehreren 100 THz notwendig. Um derartige Spektren mit einer hinreichenden spektralen Intensität zu generieren, ist die zur Zeit zur Verfügung stehende Pulsenergie der (ps) Probe-Laserstrahlung nicht ausreichend, so dass zunächst der neu aufgebaute Farbstoffverstärker optimiert werden muss. Intensive (ps) Laserpulse mit einer Pulsenergie oberhalb von 1 mJ eröffnen außerdem die Möglichkeit zur Realisierung adiabatischer Prozesse, z.B. *rapid adiabatic passage*, auf der (ps) Zeitskala. Dies ermöglicht unter anderem eine adiabatisch getriebene Frequenzkonversion nur unter Verwendung ultra-kurzer Laserpulse.

Für eine Steigerung der absolut erzielten Intensität im tiefen VUV muss außerdem die Wechselwirkungstrecke von Laserstrahlung und nichtlinearem Medium vergrößert werden. Anstelle eines Dichten Atomstrahls kann eine gasgefüllte Kapillare oder Hohlaser verwendet werden. Diese ermöglichen einen kleinen Strahldurchmesser von Pump- und Probe-Laserstrahlung und somit eine ausreichend große Intensität über eine Strecke von einige Zentimeter.

Der verwendete Aufbau für die Experimente zur kohärenten Kontrolle von Frequenzkonversionsprozessen muss dahin optimiert werden, dass die räumlich Phasenfehlانpassung zwischen den beteiligten Laserfeldern minimiert und somit der erzielbare Kontrast gesteigert wird. Zur Verbesserung des Signal-zu-Rausch-Verhältnisses ist eine Stabilisierung der relativen Phase zwischen fundamentaler und frequenzverdoppelter Strahlung notwendig.

Abstract

This thesis demonstrates efficient and coherently controlled generation of vacuum-ultraviolet (VUV) radiation pulses at wavelengths around 100 nm. Frequency conversion of ultra-short picosecond (ps) laser pulses in the visible and ultraviolet spectral region realize ultra-short pulse durations of the VUV pulses.

Chapter 1 presents the implementation of a laser system for generation, amplification and characterization of ultra-short (ps) laser pulses in the visible spectral range. Special care had to be taken to satisfy the need for laser pulses with stable pulse duration and pulse energy as well as a long term stability of the whole system. Therefore fast and stable electronics synchronize the different laser systems. Commercial laser systems, a synchronously pumped optical parametric oscillator (OPO) and a pulsed dye amplifier including a high power pump laser system generate (ps) laser pulses with wavelengths between 527 nm and 550 nm at a maximum pulse energy of 150 μ J and a pulse duration of 1.1 ps. Small modifications of the whole system allow for amplified (ps) laser pulses in the wavelength range of 505 nm up to 700 nm. A newly developed device based on the principle of *frequency-resolved optical gating* measures the (ps) laser pulses simultaneously in time and frequency domain. The combination of an autocorrelator and a spectrometer provides information on the frequency variation during the laser pulse duration (chirp) additionally to the temporal and spectral intensity distribution.

In a further step the (ps) laser system is extended by a (ns) laser system based on an (ns) optical parametric oscillator. A new pump laser, which is designed for OPO pumping, replaces the former pump source of the OPO. Thereby the pulse energy of the bandwidth-limited OPO output pulse in the visible spectral range doubled, but the quality of the spatial intensity distribution decreased. Proper synchronization of (ps) and (ns) laser systems offers the possibility of experiments involving (ps) and (ns) laser pulses simultaneously. At the same time the development of a new pulsed dye amplifier started. This amplifier relies on a modern design of the amplification stages, yielding (ps) laser pulses with increased beam quality. Furthermore the available maximum pulse energy raised but is actually limited by amplified spontaneous emission, which disturbs the amplification process.

Chapter 2 presents experimental data on coherent control of frequency conversion of ultra-short (ps) laser pulses towards the VUV spectral range. A fundamental laser pulse at $\lambda_1 = 530$ nm and its frequency doubled laser pulse at $\lambda_2 = 265$ nm simultaneously drive fifth harmonic generation and four-wave mixing in a dense jet of xenon atoms yielding VUV radiation at $\lambda_{VUV} = 106$ nm. The two processes involve different numbers of photons: The fifth harmonic generation converts five fundamental photons into one VUV photon while the four-wave mixing process converts one fundamental photon and two frequency doubled photons into one VUV photon. Both conversion processes are resonantly enhanced by a multi-photon-transition between the ground state $5p^6\ ^1S_0$ and the excited state $8d\ ^2[1/2]_1$.

Quantum interference of the induced polarization of the xenon atoms results in a modulation of the absolute VUV yield if the relative phase between the two simultaneous conversion processes, i.e. between fundamental and frequency doubled laser field, varies. Averaged experimental data show a contrast of 20%. A spatial phase mismatch between the laser fields of the two conversion processes causes an incomplete interference and therefore a contrast less than 100%. Nevertheless the experimental results successfully demonstrate the application of coherent control techniques to higher order frequency conversion processes of ultra-short (ps) laser pulses aiming at the generation of VUV radiation pulses.

Chapter 3 discusses the realization of adiabatically driven sum-frequency mixing for the generation of ultra-short laser pulses in the VUV spectral range. The nonlinear medium are again xenon atoms prepared in a dense jet. Two photons from a pump laser pulse at $\lambda_p = 225$ nm couple the ground state $5p^6\ ^1S_0$ near-resonant to the excited state $8p^2\ ^2[1/2]_0$ via a two-photon-process. In the case of a small two-photon-detuning of the pump laser frequency from the atomic resonance frequency adiabatic population transfer by *coherent population return* (CPR) occurs. The pump laser pulse prepares a coherent superposition of the two atomic states during the interaction time. Probability amplitudes of the two bare states in the coherent superposition are equal for a sufficiently intense pump laser pulse. In this case the atomic system is prepared in a state of maximum atomic coherence $|\rho_{12}| = |c_1^*c_2| = 0.5$. An additional ultra-short (ps) probe laser pulse interacts with the prepared atomic system resulting in a sum-frequency mixing process of two pump laser photons and one probe laser photon. The atomic coherence $|\rho_{12}|$ enhances the induced nonlinear polarization and therefore the conversion efficiency of the sum-frequency mixing process. The experimental data demonstrate the possibility of efficient generation of ultra-short VUV radiation pulses by combining coherent preparation by a (ns) pump laser pulse with frequency conversion of an ultra-short (ps) probe laser pulse. Furthermore the presented mixing scheme allows the conversion of spectrally broadened probe laser pulses. This makes the generation of large spectral bandwidths in the VUV spectral range possible. Such spectra are essential for the generation of laser pulses with pulse durations below 1 fs at very short wavelengths.

Anhang

A Brechungsindexbestimmung von Argon

In Kapitel 2 erfolgt eine Variation der Phase der fundamentalen Laserstrahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda_1 = 530$ nm mittels einer Gaszelle, welche mit unterschiedlichem Druck von Argon gefüllt wird. Für die Berechnung der durch Druckvariation induzierten Phasenverschiebung ist unter anderem der Brechungsindex von Argon bei einer Wellenlänge von $\lambda_1 = 530$ nm notwendig (siehe Gleichung (2.35)). In der aktuellen Literatur finden sich dazu keine Werte. Daher wurde ein Jamin-Interferometer aufgebaut, um den Brechungsindex in Abhängigkeit vom Gasdruck experimentell zu bestimmen.

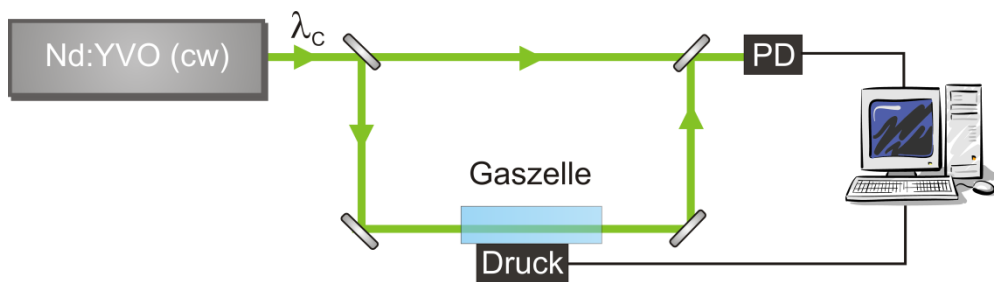


Abbildung 52: Schematische Darstellung des Jamin-Interferometers zur Brechungsindexbestimmung von Gasen.

Abbildung 52 zeigt den experimentellen Aufbau. Anstelle der fundamentalen (ps) Laserpulse mit einer Wellenlänge von $\lambda_1 = 530$ nm wird für die Messungen ein kontinuierlicher, diodengepumpter Festkörperlaser (Compass 315, Coherent GmbH) bei einer Wellenlänge von $\lambda_c = 532$ nm verwendet. Dies hat den Vorteil, dass eine zeitliche Synchronisation der Laserstrahlung, welche die beiden Interferometerarme durchläuft, entfällt. Dies erhöht die Stabilität des Aufbaus, da auf bewegliche Teile wie zum Beispiel Linearverschiebetische verzichtet werden kann. Im Spektrometer wird die einfallende Laserstrahlung mittels eines 50:50-Strahlteilers in zwei identische Teilstrahlen aufgeteilt. Ein Teilstrahl propagiert in Luft, der andere Teilstrahl durchläuft eine ca. 4 cm lange Gaszelle gefüllt mit Argon. Anschließend werden beide Teilstrahlen auf einer Photodiode (UPD-200, Alphas) räumlich überlagert. Das Photodiodensignal wird über einen Integrator (SR250, Stanford Research Systems) und einen Mess-PC in Abhängigkeit vom Gasdruck p in der Zelle aufgenommen. Das Ergebnis ist in Abbildung 53 dargestellt. Die zeitlich gemittelte Intensität des Interferogramms in Abhängigkeit der Phasenverschiebung φ_R ist gegeben durch [43]

$$\bar{I} = \frac{1}{2} I_0 [1 + \cos \varphi_R] \quad (3.35)$$

I_0 ist dabei die Intensität der beiden Teilstrahlen. Die Phasenverschiebung zwischen zwei Maxima bzw. Minima beträgt gerade 2π , so dass sich aus Abbildung 53 eine notwendige Druckänderung von $\Delta p_{2\pi} = 39.82 \pm 2.44$ mbar für eine Pha-

senverschiebung von 2π ergibt. Aus Gleichung (2.35) folgt mit der Bedingung $\varphi_R = 2\pi$

$$n_0 = \frac{\lambda}{L} \cdot \frac{p_0}{\Delta p_{2\pi}} + 1 \quad (3.36)$$

Für einen Druck $p_0 = 1013$ mbar ergibt sich daraus ein Brechungsindex von Argon bei einer Wellenlänge von 532 nm von $n_{Ar}^{532nm} = 1.00034 \pm 0.00002$.

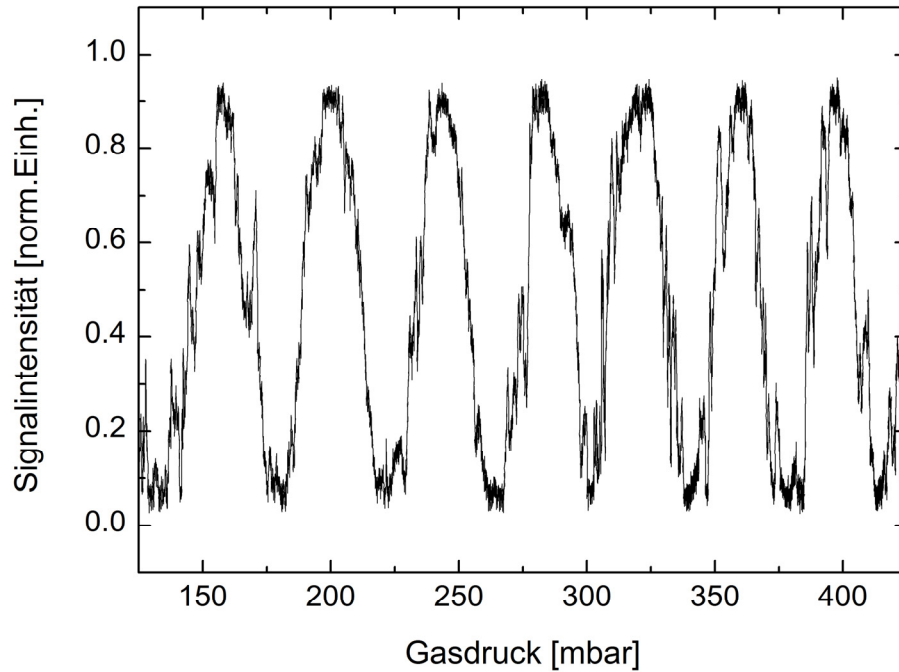


Abbildung 53: Interferrogramm des Jamin-Interferrometers. Dargestellt ist die von der Photodiode gemessene Signalintensität in Abhängigkeit des Gasdrucks in der Zelle.

Literaturverzeichnis

- [1] M. Shapiro and P. Brumer, *Physics Reports* **425**, 195-264 (2006).
- [2] M. Shapiro and P. Brumer, *Advances In Atomic, Molecular, And Optical Physics* **42**, 287-345 (2000).
- [3] D. Xenakis, *Optics Communications* **152**, 83-88 (1998).
- [4] X. Xing, D. Charalambidis, E. Koutsourelaki, and C. Fotakis, *Physical Review A* **47**, 2296-2304 (1993).
- [5] E. Korsunsky and M. Fleischhauer, *Physical Review A* **66**, (2002).
- [6] S. E. Harris, J. E. Field, and A. Imamoglu, *Physical Review Letters* **64**, 1107-1110 (1990).
- [7] T. Rickes, J.P. Marangos, and T. Halfmann, *Optics Communications* **227**, 133-142 (2003).
- [8] Maneesh Jain, Hui Xia, G. Yin, A. Merriam, and S. Harris, *Physical Review Letters* **77**, 4326-4329 (1996).
- [9] S.E. Harris, G.Y. Yin, M. Jain, H. Xia, and A.J. Merriam, *Phil. Trans. Roy. Soc. London (Ser A. Mathematical, Physical And Engineering Sciences)* **355**, 2291 (1997).
- [10] S. E. Harris and A. V. Sokolov, *Physical Review A* **55**, R4019-R4022 (1997).
- [11] S. E. Harris and Maneesh Jain, *Optics Letters* **22**, 636 (1997).
- [12] Michael Fleischhauer, Atac Imamoglu, and Jonathan Marangos, *Reviews Of Modern Physics* **77**, 633-673 (2005).
- [13] J.P. Marangos, *Journal Of Modern Optics* **45**, 471 (1998).
- [14] Martin Oberst, Holger Münch, Gayane Grigoryan, and Thomas Halfmann, *Physical Review A* **78**, (2008).
- [15] N V Vitanov, T Halfmann, B W Shore, and K Bergmann, *Annual Review Of Physical Chemistry* **52**, 763-809 (2001).
- [16] T. Rickes, L. P. Yatsenko, S. Steuerwald, T. Halfmann, B. W. Shore, N. V. Vitanov, and K. Bergmann, *The Journal Of Chemical Physics* **113**, 534 (2000).
- [17] T. Rickes, *Doktorarbeit am FB Physik der TU Kaiserslautern* (2002).
- [18] Coherent GmbH, *Handbuch MIRA 900P*.

- [19] APE GmbH, Handbuch OPOautomatic.
- [20] P. Ackermann, Bachelorarbeit im FB Physik an der TU Darmstadt (2009).
- [21] B. Wittrock, Bachelorarbeit im FB Physik an der TU Darmstadt (2009).
- [22] Ileana Rau, François Kajzar, Jérôme Luc, Bouchta Sahraoui, and Georges Boudes, *Journal Of The Optical Society Of America B* **25**, 1738 (2008).
- [23] F. Buechler, Bachelorarbeit im FB Physik an der TU Darmstadt (2009).
- [24] M. Oberst, Doktorarbeit am FB Physik der TU Kaiserslautern (2007).
- [25] N. Boens, *Anal .Chem.* **79**, 2137 (2007).
- [26] Stanford Research Systems, Handbuch Verzögerungsgenerator DG645.
- [27] T. Adachi, K. Kondo, and S. Watanabe, *Applied Physics B* **55**, 323-326 (1992).
- [28] G. Scoles, *Atomic And Molecular Beam Methods* (Oxford University Press, NY, 1988).
- [29] T. Bultmann, D. Bingemann, N. P. Ernsting, D. Schwarzer, and L. Nikowa, *Review Of Scientific Instruments* **66**, 4393 (1995).
- [30] Korth Kristalle GmbH, Datenblatt MgF-Fenster (2010).
- [31] V. Dovgal, Masterarbeit im FB Physik an der TU Darmstadt (2009).
- [32] Exciton GmbH, Datenblatt Rhodamin 6G (2010).
- [33] U. Brackmann, *Laser Dyes*, Dritte Edi (Lambdaphysik AG, Göttingen, 2000).
- [34] Ce Chen, Yi-Yian Yin, and D. Elliott, *Physical Review Letters* **64**, 507-510 (1990).
- [35] N.E. Karapanagioti, D. Xenakis, D. Charalambidis, and C. Fotakis, *Journal Of Physics B: Atomic, Molecular And Optical Physics* **29**, 3599–3609 (1996).
- [36] E. Charron, A. Giusti-Suzor, and F. Mies, *Physical Review Letters* **71**, 692-695 (1993).
- [37] S.M. Park, S.P. Lu, and R.J. Gordon, *The Journal Of Chemical Physics* **94**, 8622 (1991).
- [38] N. H. Bonadeo, *Science* **282**, 1473-1476 (1998).

- [39] A. Haché, Y. Kostoulas, R. Atanasov, J. Hughes, J. Sipe, and H. van Driel, *Physical Review Letters* **78**, 306-309 (1997).
- [40] G. Hilber, A. Lago, and R. Wallenstein, *Journal Of The Optical Society Of America B* **4**, 1753 (1987).
- [41] H. Fielding, *Optics Communications* **123**, 129-132 (1996).
- [42] A. Tünnermann, K. Mossavi, and B. Wellegehausen, *Physical Review A* **46**, 2707-2717 (1992).
- [43] W. Demtröder, *Experimentalphysik II*, 2.Auflage (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 2002).
- [44] R.W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Second Edi (Academic Press, London, 2003).
- [45] D.C. Hanna, M.A. Yuratich, and D.C. Cotter, *Nonlinear Optics Of Free Atoms And Molecules* (Springer-Verlag, Berlin, 1979).
- [46] Yu Ralchenko, A.E. Kramida, J. Reader, and NIST ASD Team, *NIST Atomic Spectra Database (version 3.1.5) [Online]* (National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD, 2010).
- [47] X. Li, A. L'Huillier, M. Ferray, L. Lompré, and G. Mainfray, *Physical Review A* **39**, 5751-5761 (1989).
- [48] G. Racah, *Phys.Rev.* **61**, 537 (1942).
- [49] A. Lago, G. Hilber, and R. Wallenstein, *Physical Review A* **36**, 3827-3836 (1987).
- [50] V. Peet, *Optics Communications* **189**, 267-273 (2001).
- [51] T. Adachi, K. Kondo, and S. Watanabe, *Applied Physics B Photophysics And Laser Chemistry* **55**, 323-326 (1992).
- [52] Ph. Balcou and Anne L'Huillier, *Physical Review A* **47**, 1447-1459 (1993).
- [53] H. Stöcker, *Taschenbuch Der Physik*, vierte Auf (Verlag Harri Deutsch, Thun Und Frankfurt A.M., 2000).
- [54] Wikipedia - Die Freie Enzyklopädie, Gaußstrahl (<http://de.wikipedia.org/w/index.php?title=Gau%25C3%259F-Strahl&oldid=77369808>) (2010).
- [55] E.Hecht, *Optik*, Dritte Auf (Oldenbourg, 2001).

- [56] J. P. Marangos, N. Shen, H. Ma, M. H. R. Hutchinson, and J. P. Connerade, *Journal Of The Optical Society Of America B* **7**, 1254 (1990).
- [57] B. W. Shore, *The Theory Of Coherent Excitation, Volume I&II* (Wiley & Sons, New York, 1990).
- [58] S. Harris and A. Sokolov, *Physical Review Letters* **81**, 2894-2897 (1998).
- [59] A. V. Sokolov, D. D. Yavuz, and S. E. Harris, *Optics Letters* **24**, 557 (1999).
- [60] A V Sokolov and S E Harris, *Journal Of Optics B: Quantum And Semiclassical Optics* **5**, R1-R26 (2003).
- [61] Stephen E. Harris, *Physics Today* **50**, 36 (1997).
- [62] Martin Oberst, Jens Klein, and Thomas Halfmann, *Optics Communications* **264**, 7 (2006).
- [63] T. Halfmann, N. Hay, J. W. G. Tisch, and J. P. Marangos, *Optics Communications* **182**, 229 (2000).
- [64] S. A. Myslivets, A. K. Popov, T. Halfmann, J. P. Marangos, and Thomas F. George, *Optics Communications* **209**, 335 (2002).
- [65] K.G.H. Baldwin, J.P. Marangos, D.D. Burgess, and M.C. Gower, *Optics Communications* **52**, 3 (1985).
- [66] J. P. Marangos, N. Shen, H. Ma, M. H. R. Hutchinson, and J. P. Connerade, *Journal Of The Optical Society Of America B* **7**, 1254 (1990).
- [67] R. Buffa, M. Tognetti, M. Anscombe, and J. Marangos, *Physical Review A* **72**, (2005).
- [68] Fam Kien, Nguyen Shon, and K. Hakuta, *Physical Review A* **64**, (2001).
- [69] C. Dorman, I. Kucukkara, and J. Marangos, *Physical Review A* **61**, (1999).
- [70] Yong-qing Li and Min Xiao, *Optics Letters* **21**, 1064 (1996).
- [71] Andrew J. Merriam, S. J. Sharpe, H. Xia, D. Manuszak, G. Y. Yin, and S. E. Harris, *Optics Letters* **24**, 625 (1999).
- [72] J.P. Marangos and T. Halfmann, in *OSA Handbook Of Optics, Vol IV*, Third Edit (2009).
- [73] H. Münch, Diplomarbeit am FB Physik der TU Kaiserslautern (2007).
- [74] M. Oberst, Doktorarbeit am FB Physik der TU Kaiserslautern (2007).

- [75] M. Aymar and M. Coulombe, Nuclear Data Tables **21**, 537 (1978).
- [76] T. Chang and Young Kim, Physical Review A **26**, 2728-2732 (1982).
- [77] N. V. Vitanov, B. W. Shore, L. Yatsenko, K. Böhmer, T. Halfmann, T. Rickes, and K. Bergmann, Optics Communications **199**, 117 (2001).
- [78] J. Berkowitz, *Photoabsorption, Photoionization And Photoelectron Spectroscopy* (Academic Press, New York, 1979).
- [79] H. Beutler, Z. Phys. **93**, 177 (1935).
- [80] I.D. Petrov, V.L. Sukhorukov, and H. Hotop, Journal Of Physics B: Atomic, Molecular And Optical Physics **35**, 323 (2002).
- [81] S. Schohl, H. Hotop, and D. Klar, *Resonance Ionization Spectroscopy* (Institute of Physics Publishing, Bristol, 1992).
- [82] M. Stellpflug, M. Johnsson, I.D. Petrov, and T. Halfmann, The European Physical Journal D - Atomic, Molecular And Optical Physics **23**, 35-42 (2003).
- [83] Steven C. Pinault and M. J. Potasek, Journal Of The Optical Society Of America B **2**, 1318 (1985).
- [84] Nori Shibata, Robert G. Waarts, and Ralf P. Braun, Optics Letters **12**, 269 (1987).
- [85] R. H. Stolen, Clinton Lee, and R. K. Jain, Journal Of The Optical Society Of America B **1**, 652 (1984).
- [86] Jinendra K. Ranka, Robert S. Windeler, and Andrew J. Stentz, Optics Letters **25**, 25 (2000).
- [87] Stéphane Coen, Alvin Hing Lun Chau, Rainer Leonhardt, John D. Harvey, Jonathan C. Knight, William J. Wadsworth, and Philip St. J. Russell, Journal Of The Optical Society Of America B **19**, 753 (2002).

Publikationen und Tagungsbeiträge

Veröffentlichungen

- [1] H. Münch, S. Chakrabarti and T. Halfmann, *Coherent control of Frequency Conversion towards Short (picosecond) Vacuum-Ultraviolet Radiation Pulses*, Phys. Rev. A 82, 033821 (2010)
- [2] S. Chakrabarti, H. Münch and T. Halfmann, *Adiabatically-Driven Frequency Conversion towards Short, Extreme-Ultraviolet Radiation Pulses*, (eingereicht)
- [3] M. Oberst, H. Münch, G. Grigoryan and T. Halfmann, *Stark-Chirped Rapid Adiabatic Passage among a Three State molecular System: Experimental and Numerical Investigations*, Phys. Rev. A 78, 033409 (2008)
- [4] M. Oberst, H. Münch and T. Halfmann, *Efficient Coherent Population Transfer in NO Molecules by Stark-Chirped Rapid Adiabatic Passage in Three State quantum Systems*, Phys. Rev. Lett. 99, 173001 (2007)

Tagungsbeiträge

- [1] H. Münch, S. Chakrabarti and T. Halfmann, *Coherent Control of Frequency Conversion Processes*, CAMEL6 (2010), Varna – Bulgarien (Vortrag)
- [2] M. Oberst, H. Münch und T. Halfmann, *Kohärenter Besetzungstransfer in NO-Molekülen mittels Stark-chirped Rapid Adiabatic Passage im Drei-Niveau-System*, DPG Frühjahrstagung 2008, Darmstadt (Poster)
- [3] M. Oberst, H. Münch und T. Halfmann, *Kohärenter Besetzungstransfer in NO-Molekülen mittels Stark-chirped Rapid Adiabatic Passage im Drei-Niveau-System*, GRK Seminar 2006, Bad Münster am Stein (Poster)

Betreute Master- und Bachelorarbeiten

Masterarbeiten

Artur Araszkiewicz, *Erzeugung und Anwendung gepulster kohärenter Strahlung zur effizienten Frequenzverdreifachung in Krypton*, 2009

Vladimir Dovgal, *Entwicklung und Aufbau eines Verstärkers für ps-Laserpulse*, 2009

Bachelorarbeiten

Markus Habenberger, *Aufbau eines klassischen Analogons zu elektromagnetisch induzierter Transparenz*, 2008

Patric Ackermann, *Aufbau eines Autokorrelators zur Charakterisierung von Pikosekunden-Laserpulsen*, 2009

Frank Büchler, *Aufbau eines Spektrometers zur Charakterisierung von Pikosekunden-Laserpulsen*, 2009

Christian Hubrich, *Aufbau eines Spektrometers für Laserstrahlung mit Wellenlängen von 50 nm bis 750 nm*, 2009

Benjamin Wittrock, *Frequenzaufgelöste zeitliche Analyse von ultrakurzen Laserpulsen im sichtbaren Spektralbereich*, 2009

Lebenslauf

Name : Holger Münch

Geburtsdatum : 04. August 1980

Geburtsort : Hannover

Nationalität : deutsch

Schulbildung

1987-1991 : Grundschule an den Teichen, Holzminden

1991-1993 : Orientierungsstufe Liebigstraße, Holzminden

1993-2000 : Wilhelm-Campe-Gymnasium Holzminden
(Abitur 06/2000)

2000-2001 : Wehrdienst

Studium

2001-2007 : Physikstudium, Technische Universität Kaiserslautern

2005 : Auslandsemster, University of Adelaide, Australien

2006-2007 : Diplomarbeit – Arbeitsgruppe T.Halfmann,
Technische Universität Kaiserslautern

2007 : Diplom

2007 : Stipendiat des Graduiertenkollegs *Nichtlineare Optik und
Ultrakurzzeitphysik*, Technische Universität Kaiserslautern

2007 : Wissenschaftlicher Mitarbeiter, Arbeitsgruppe
T.Halfmann, Technische Universität Kaiserslautern

seit 2008 : Wissenschaftlicher Mitarbeiter, Arbeitsgruppe
T.Halfmann, Technische Universität Darmstadt

Danksagung

Zu guter Letzt möchte ich noch all denen danken, die mich während meiner Promotion in den letzten Jahren und auch darüber hinaus unterstützt haben

Thomas – Dir möchte ich dafür danken, dass du mir die Gelegenheit gegeben hast meine Dissertation in deiner Arbeitsgruppe anzufertigen. Als ich 2007 in Kaiserslautern mit der Arbeit begann, hatte ich keine Idee wie vielseitig die Erfahrungen sein würden, die ich in den kommenden Jahren sammeln sollte. Insbesondere deine Berufung an die TU Darmstadt und der damit verbundene Umzug der Labore eröffnete mir die Möglichkeit mich außer in der Wissenschaft auch auf dem Gebiet der Elektro- und Wasserinstallation, der Klimatechnik sowie der Umzugslogistik zu betätigen. Inzwischen weiß ich, warum Physiker gerne als *Allrounder* bezeichnet werden! Vielen Dank für die tollen Jahre in deiner AG und alles Gute für die Zukunft.

Professor Gerhard Birkel – Vielen Dank, für die freundliche Übernahme des Zweitgutachtens.

Fabian – Im Oktober 2001 nahmen wir zeitgleich das Physikstudium an der TU Kaiserslautern auf. Ich weiß nicht mehr, wann genau wir uns zum ersten Mal über den Weg liefen, aber im Frühjahr 2002 absolvierten wir gemeinsam den ersten Grundpraktikumsversuch – und die (beinahe) unendliche Geschichte begann. Auf das Grundpraktikum folgten das Fortgeschrittenenpraktikum und schließlich die Diplomarbeit in derselben AG. Und nach sechs Jahren gemeinsamen Arbeitens (und Feierns...) begannen wir jeweils unsere Promotion in der Arbeitsgruppe von Thomas. In wenigen Monaten werden sich unsere Wege nun doch einmal trennen...nach nicht weniger als neun Jahren! Wir haben zusammen viel gelacht, gegrübelt, gehadert und **IHM**, der uns aus Lautern folgte, im Labor einen harten Kampf geliefert. Ich hoffe, wir werden nicht so auseinandergehen wie unsere Vorgänger und wünsche dir viel Erfolg und Spaß in deiner zukünftigen Karriere als Lehrer.

Shrabana – Du hast mich eine lange Zeit während meiner Promotion begleitet und so manche Nacht mit mir am Experiment verbracht. Ich habe viel Neues von dir gelernt und du warst eine große Unterstützung für mich am Experiment, insbesondere an den Lasersystemen. Deine Erzählungen von deiner Heimat waren eine willkommene Abwechslung vom Laboralltag. Ich wünsche dir, deinem Mann und eurem Kind alles Gute und eine schöne Zukunft in Indien.

Martin und Jens – Bereits während meiner Diplomarbeit habt ihr mir die Grundlagen des wissenschaftlichen Arbeitens näher gebracht und mich auch in der Anfangszeit meiner Promotion weiter unterstützt. Erst heute weiß ich zu schätzen, welche hervorragende Ausbildung ich durch euch genossen habe und möchte euch dafür an dieser Stelle noch einmal danken!

Vladimir und Artur – Ihr wart die ersten Masterstudenten, die mich bei meiner Arbeit unterstützt haben. Ohne eure Hilfe, hätte ich die in Kaiserslautern abgebauten Experimente hier in Darmstadt nicht in solch kurzer Zeit wieder aufbauen können. Durch euch habe ich Vieles gelernt, von dem ich in Zukunft bestimmt noch oft profitieren werde, danke. Ich wünsche euch viel Erfolg bei der Promotion bzw. der Karriere in der Industrie.

Patric, Frank, Christian und Benny – Ihr alle habt mir im Rahmen eurer Bachelorarbeiten viel Arbeit abgenommen und mit eurem Wissen und Können zum Erfolg der Experimente beigetragen. Es war eine besondere Erfahrung euch zu betreuen und ich wünsche euch viel Spaß und Erfolg bei euren Masterarbeiten. Lasst euch nicht unterkriegen!

Julia und Markus – Als ehemalige Doktoranden der AG Tschudi seid ihr als Postdocs in unsere AG gekommen. Dank eures Wissens fiel uns die Eingewöhnung hier in Darmstadt äußerst leicht. Insbesondere eure Unterstützung bei meinen Experimenten möchte ich nicht missen, vielen Dank.

Ellen und Damaris – Als Sekretärinnen wart beziehungsweise seid ihr die gute Seele der AG. Ellen, du hast uns hier in Darmstadt so herzlich aufgenommen, dass nur selten die Sehnsucht nach der alten Heimat in Kaiserslautern in uns aufkam. Vielen Dank dafür. Als du in deinen wohlverdienten Ruhestand getreten bist, hast du Damaris ihren Platz eingenommen und dir stets unseren Kummer anhören müssen. Vielen Dank für deine vielseitige Unterstützung in bürokratischen Dingen. Insbesondere das MaWi-Projekt hätte ich ohne deine Hilfe nicht bewältigen können!

Das NLQ-Team – Inzwischen umfasst die Arbeitsgruppe *Nichtlineare Optik und Quantenoptik* so viele Mitglieder, dass ich nicht alle hier einzeln aufführen kann. Ich möchte euch allen für die angenehme Arbeitsatmosphäre und die konstruktive Zusammenarbeit in den letzten Jahren danken. Insbesondere danke ich meinen Ko-Doktoranden **Georg** und **Uwe** sowie unseren ehemaligen und aktuellen Masterstudenten **Andy, Martin, Frank, Florian, Daniel** und **Simon**. Euch allen wünsche ich viel Erfolg bei allen zukünftigen Herausforderungen.

Richard und Lothar – Ihr seid zwar in Lautern zurückgeblieben, aber ich habe euch nicht vergessen. Gerade zu Beginn meiner Promotion warst du Richard mir eine große Hilfe und ich werde niemals deine immense Unterstützung beim Umzug unserer Labore vergessen. Auch heute noch kann ich mich bei Problemen an dich wenden und stoße stets auf offene Ohren. Vielen herzlichen Dank dafür. Lothar, du hast mich noch etwas länger begleitet als Richard und warst trotz 100 km Anfahrt stets zur Stelle, wenn die Lasersysteme Probleme machten. Vielen Dank für deine offene und ehrliche Art und dass du dein Wissen mit mir geteilt hast.

Die Zurückgebliebenen – Leider konnten wir nicht alle, die uns lieb waren aus Kaiserslautern mit nach Darmstadt nehmen. Insbesondere möchte ich mich bei **Anett** und **Anni** für die nette Arbeitsatmosphäre in Kaiserslautern bedanken. Den Mitgliedern der AG Aeschlimann, insbesondere **Harry**, **Pit** und **Christian**, danke ich für eine gute Nachbarschaft und Nothilfe auch nachts um 02:00 Uhr.

Die technischen Mitarbeiter – Den zahlreichen Mitarbeitern der Feinmechanischen Werkstatt unter **Herrn Kalbfleisch** möchte ich für die stete, kreative und äußerst schnelle Hilfe danke. Ihre Unterstützung, z.B. beim Aufstellen optischer Tische, geht weit über das hinaus, was man von einer Feinmechanischen Werkstatt erwartet. Gleiches gilt für die Elektronikwerkstatt mit **Herrn Baumann**, **Herrn Kringel** und **Herrn Rök**.

Meiner Familie – Euch allen ein herzliches Dankeschön für die vielseitige Unterstützung. Insbesondere dir **Kathrin** möchte ich dafür danken, dass du die vielen Messnächte, in denen du dich allein um unsere beiden Kinder kümmern musstest, so geduldig akzeptiert hast. Ich hoffe, ich kann mich irgendwann dafür revanchieren.

Danke euch allen!!!

Darmstadt, September 2010

Holger Münch